



N° d'ordre NNT : 2016-04

THESE DE DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LYON

opérée au sein de l'école centrale de Lyon

Délivrée par l'Ecole Centrale de Lyon

Soutenue publiquement le 09/04/2016, par

Abdellah OGBI

Spécialité : « Modélisation »

Ecole doctorale : ELECTRONIQUE, ELECTROTECHNIQUE, AUTOMATIQUE

**Modélisation de l'interaction champ
électrique-particules diélectriques
entre effet électromécaniques et aspects
électrocinétiques**

Application aux cellules biologiques

Devant le Jury composé de :

Olivier CHADEBEC	G2Elab, Université de Grenoble	Rapporteur
Clair POIGNARD	INRIA Bordeaux Sud-Ouest, Bordeaux	Rapporteur
Frédéric BOUILLAUT	GeePs Centrale-Supelec, Paris	Examineur
Damien VOYER	Ampère, Ecole centrale de Lyon	Examineur
Ronan PERRUSSEL	Laplace, ENSEEIT, Université de Toulouse	Co-Directeur
Laurent NICOLAS	Ampère, CNRS, Ecole centrale de Lyon	Directeur de thèse

Table des matières

Introduction	5
1 Positionnement du problème	7
1.1 Électromécanique à champ alternatif	8
1.1.1 Forces exercées sur les particules	8
1.1.2 Polarisation et dispersion	9
1.1.3 Polarisation interfaciale (et effet Maxwell-Wagner)	11
1.1.4 Polarisabilité et théorie de DEP classique	12
1.2 Champ électrique et cellules biologiques	19
1.2.1 Modèle électrique de cellule	19
1.2.2 Le modèle à cellule isolée	19
1.2.3 Formule de mélange de Maxwell	20
1.2.4 Caractérisation des cellules biologiques	21
1.2.5 Méthode par mesure d'impédance	21
1.3 Au delà de la théorie classique de Clausius-Mossoti	22
1.4 Effets électrocinétiques	22
1.4.1 Cellules biologiques et phénomènes d'interface	24
1.4.2 Double couche électrique	24
1.4.3 Electrophorèse	25
1.4.4 Electro-osmose	26
1.5 Conclusion	28
Bibliographie	28
2 Polarisation d'une particule diélectrique soumise à un champ électrique statique	35
2.1 Développement multipolaire	36
2.1.1 Equation de Laplace	36
2.1.2 Harmoniques sphériques	37
2.1.3 Développement multipolaire du potentiel dû à une distribution de charges	41
2.1.4 Représentation physique des multipôles	44
2.2 Les moments effectifs	48
2.2.1 Développement en harmoniques sphériques	49
2.2.2 Détermination numérique des moments effectifs	50
2.2.3 Champ uniforme	51
2.2.4 Champ non uniforme	56
2.3 Modèle multicouche	58
2.3.1 Modèle multicouche sphérique	58
2.4 Conclusion	60
Bibliographie	60

3 Etude électromécanique de phénomènes diélectrophorétiques	63
3.1 Calcul de la force et du couple électromécanique	64
3.1.1 Introduction et notations	64
3.1.2 Force et couple selon le modèle du moment dipolaire effectif .	65
3.1.3 Force exercée sur une sphère diélectrique par un champ généré par une charge ponctuelle	65
3.1.4 Force exercée sur les multipôles linéaires	67
3.1.5 Force exercée sur les multipôles (cas cartésien général)	68
3.1.6 Calcul de la force utilisant le développement en harmoniques sphériques	70
3.2 Particules ou milieu de suspension présentant des pertes	72
3.2.1 Calcul de la force et du couple par les moments effectifs . . .	72
3.2.2 Tenseur de contraintes de Maxwell	79
3.2.3 Application à une configuration pointe-plan	81
3.2.4 Particule au centre d'un système quadrupolaire d'électrodes .	84
3.3 Conclusion	87
Bibliographie	87
4 Phénomènes électriques interfaciaux et effets électrocinétiques : application à l'électrorotation	91
4.1 Electrocinétique et double couche électrique	92
4.1.1 Potentiel électrocinétique	92
4.1.2 Double couche électrique : Description et modèles	92
4.1.3 Mobilité électrophoretique des particules rigides	94
4.2 Charges de surface et conductivité surfacique	94
4.3 Electrorotation	97
4.3.1 Dispersion et fréquences caractéristiques pour le modèle dipolaire classique	98
4.3.2 Valeurs caractéristiques	98
4.3.3 Prise en compte des charges surfaciques	102
4.4 Prise en compte des effets électrocinétiques dans le phénomène d'élec- trorotation	103
4.4.1 Modèle simplifié de cellule	103
4.4.2 Modèle de cellule avec paroi	106
4.5 Conclusion	116
Bibliographie	116
Conclusion	119
Annexes	121
A Polynômes et fonctions de Legendre associées	123
B Modèle multicouche	125

C Effets électromécaniques en quasi-statique	129
D Electrophorèse et électro-osmose	133
E Modèle général pour la mobilité électrophorétique	135
F Valeurs caractéristique d'un spectre diélectrophorétique	137
G Calcul de la vitesse électro-osmotique due à la présence d'une double couche électrique.	139
Bibliographie	141

Résumés

Résumé : Dans ce travail, nous nous intéressons à l'interaction champ électrique-particule diélectrique dans les phénomènes diélectrophorétiques, aussi bien d'un point de vue théorique que numérique. L'application à long terme concerne l'électromanipulation des cellules biologiques. La compréhension de ces phénomènes nécessite une modélisation complète des mécanismes de polarisation qui régissent l'interaction champ-particule, et met en ?uvre des modèles électromécanique et électrocinétique.

Après avoir introduit les différents phénomènes et notions nécessaires, nous abordons la modélisation de la polarisation à l'aide de la théorie du potentiel et proposons une approche pour déterminer numériquement les coefficients de polarisation identifiés. Nous montrons que, si le développement multipolaire peut se réduire au premier ordre pour le cas d'une particule sphérique plongée dans un champ uniforme, les ordres supérieurs sont nécessaires pour les particules non sphériques. Nous montrons également comment un processus d'homogénéisation permet d'étudier les configurations de particules multicouches avec cette approche.

Dans le cadre de l'étude électromécanique des phénomènes diélectrophorétiques, nous mettons ensuite en ?uvre cette approche multipolaire. Deux applications traitées numériquement sont présentées. Nous y montrons la pertinence de cette approche pour calculer la force et le couple exercés sur une particule dans des situations où le champ appliqué présente de fortes non-uniformités, l'approche dipolaire classique se révélant beaucoup moins performante dans ce cas.

La particule et son milieu de suspension étant en réalité deux milieux en contact mais non-indépendants, des phénomènes électrocinétiques se produisent à l'interface. Ces effets interfaciaux sont abordés en vue de les prendre en compte dans le phénomène d'électrorotation d'une cellule biologique. Nous modélisons le problème complet d'une particule sphérique chargée plongée dans un milieu de suspension et soumise à un champ tournant en prenant en compte les effets électro-osmotiques. La résolution par éléments finis de ce problème couplé montre la pertinence de l'approche développée, notamment pour les basses fréquences.

Abstract : In this work, we investigate about the interaction between electrical fields and dielectric particles in the dielectrophoretic phenomena, in theoretical and numerical ways. The long-term application are related to elctromanipulation and caracterisation of biological cells. Understanding these phenomena requires a complete modeling of polarization mechanisms governing the field-particle interaction and implements electromechanical and electrokinetic models.

After introducing the necessary concepts and phenomena, we address polarization modeling using potential theory and suggest an approach for a numerical determination of polarization coefficients. We show that if the multipolar expansion can be reduced to the first order for the case of a spherical particle immersed in a uniform field, the higher orders are needed for nonspherical particles. We show also how a homogenization process allows the study of multilayered particles configurations using this approach.

As part of the electromechanical study of dielectrophoretic phenomena, we implement the multipolar approach for two applications numerically treated. We show the relevance of this approach to calculate the force and torque exerted on a particle in situations where the applied field has strong non-uniformities, where the classical dipole approach turn out to be much less efficient.

The particle and the suspending medium are in reality two media in contact but not independent as some electrokinetic phenomena occur at the interface. These interfacial effects are addressed in order to be taken into account in the electrorotation phenomenon of a biological cell. The model dealing with the whole problem of a charged spherical particle immersed in a suspension medium and subjected to a rotating field and taking into account the electro-osmotic effects is treated. The resolution of the corresponding coupled problem using the finite element method shows the relevance of this approach.

Introduction

Avec l'essor des Nanotechnologies et plus récemment des Nanobiotechnologies, le domaine des microsystèmes (MEMS¹) et des biomicrosystèmes (BioMEMS) a connu un très fort développement ces dernières années, motivé en grande partie par leurs nombreuses applications à la chimie ou à la biologie. Pour ce qui concerne plus particulièrement les biotechnologies, le traitement d'échantillons biologiques nécessite souvent la manipulation d'objets biologiques de taille inférieure à la dizaine de microns, tels que des cellules biologiques, des nanoparticules solides ayant des fonctions biologiques spécifiques, ou des gouttes de solutions biologiques plongées dans un liquide non miscible. Pour manipuler ces objets, on peut utiliser un champ électrique dont il faut alors être capable de maîtriser les effets. Si ce champ électrique est non-uniforme, la particule et son milieu environnant se polarisent, engendrant une force qui provoque le déplacement de la particule : c'est le principe de la diélectrophorèse. Pour étudier ces phénomènes, on peut se ramener à un problème d'interaction champ électrique-particule diélectrique. C'est dans ce cadre général que s'inscrit ce travail de thèse.

Deux applications principales sont visées à plus long terme. La première concerne la manipulation des particules diélectriques, et plus particulièrement des particules biologiques, qui occupe une place importante dans de nombreuses applications industrielles (colloïdes, gels, purification de l'eau,...) et en biologie (séparation, tri cellulaire, électroporation,...). La seconde concerne la caractérisation électrique de ces particules. Ces deux aspects sont en fait intimement liés. D'une part, la manipulation des particules diélectriques dans les microsystèmes permet d'établir des modèles de leur comportement diélectrique. Ces modèles permettent non seulement de prédire et de contrôler les effets électromécaniques et électrocinétiques des particules manipulées, mais fournissent aussi des informations précieuses sur leurs propriétés électriques caractéristiques (permittivité, conductivité, circuit équivalent,...) par recours à un problème inverse adapté. D'autre part, la caractérisation électrique précise de ces particules permet de renseigner les modèles utilisés dans les applications diélectrophorétiques en vue d'optimiser les microsystèmes conçus pour développer ces effets.

Dans ce travail de thèse, nous nous intéressons donc à l'interaction champ électrique-particule diélectrique dans les phénomènes diélectrophorétiques. Ils seront étudiés aussi bien d'un point de vue théorique que numérique. La compréhension de ces phénomènes nécessite une modélisation complète des mécanismes de polarisation qui régissent l'interaction champ-particule. Elle doit donc, en toute rigueur, mettre en oeuvre des modèles électromécanique et électrocinétique.

1. Microelectromechanical systems

Dans cette optique, le chapitre 1 introduit les différents phénomènes et notions nécessaires pour ce travail, alors que le chapitre 2, consacré à l'étude et à la modélisation de la polarisation, développe à l'aide de la théorie du potentiel les bases théoriques de cette modélisation, et propose une approche pour déterminer numériquement les coefficients de polarisation identifiés.

Comme mentionné ci-dessus, les deux principales applications visées à long terme sont la modélisation de la manipulation et la caractérisation des particules diélectriques, et plus particulièrement des cellules biologiques. La théorie de l'électromécanique des particules permet d'aborder la première de ces applications tandis que l'étude des effets électrocinétiques permet d'approcher la seconde.

Le troisième chapitre, qui traite de l'étude électromécanique des phénomènes diélectrophorétiques, met en oeuvre l'approche multipolaire introduite dans le chapitre 2. Deux applications traitées numériquement sont également présentées.

Les différents modèles utilisés jusqu'ici traitent la particule et son milieu de suspension comme deux milieux en contact mais indépendants. Cependant, en réalité, des phénomènes électrocinétiques se produisent à l'interface de la particule et du milieu fluide l'entourant. L'objectif du chapitre 4 est d'aborder ces effets interfaciaux afin de les prendre en compte dans le phénomène d'électrorotation d'une cellule biologique.

Positionnement du problème

Sommaire

1.1 Électromécanique à champ alternatif	8
1.1.1 Forces exercées sur les particules	8
1.1.2 Polarisation et dispersion	9
1.1.3 Polarisation interfaciale (et effet Maxwell-Wagner)	11
1.1.4 Polarisabilité et théorie de DEP classique	12
1.2 Champ électrique et cellules biologiques	19
1.2.1 Modèle électrique de cellule	19
1.2.2 Le modèle à cellule isolée	19
1.2.3 Formule de mélange de Maxwell	20
1.2.4 Caractérisation des cellules biologiques	21
1.2.5 Méthode par mesure d'impédance	21
1.3 Au delà de la théorie classique de Clausius-Mossotti	22
1.4 Effets électrocinétiques	22
1.4.1 Cellules biologiques et phénomènes d'interface	24
1.4.2 Double couche électrique	24
1.4.3 Electrophorèse	25
1.4.4 Electro-osmose	26
1.5 Conclusion	28
Bibliographie	28

Dans ce chapitre, nous positionnerons le problème de l'interaction champ électrique - particule biologique dans un cadre général d'électromécanique des particules et d'électrocinétique, en introduisant les notions et les éléments de ces théories nécessaires à notre étude. Dans une première partie concernant l'électromécanique, nous présenterons en particulier les phénomènes généraux de polarisation et de polarisation interfaciale, ainsi que la polarisabilité des particules et son lien avec les effets électromécaniques. Quelques méthodes usuelles de caractérisation des cellules biologiques seront ensuite présentées, toutes étant basées sur la théorie classique de Clausius-Mossotti. Cette partie sera suivie par une discussion sur les limites de cette théorie. Enfin, dans une dernière partie, nous nous focaliserons sur les effets électrocinétiques liés à la formation de la double couche électrique autour de la cellule biologique chargée plongée dans un fluide de suspension et soumise à un champ électrique extérieur.

1.1 Électromécanique à champ alternatif

L'électromécanique des particules est la théorie qui s'intéresse aux forces et aux couples exercés sur des particules ou des ensembles de particules de taille inférieure à environ 10^{-3}m sous l'action d'un champ électrique, ainsi que la mécanique et la dynamique induite par ces forces et couples. Le champ électrique peut être imposé par des moyens externes, par exemple des électrodes dans des microsystèmes, ou par d'autres particules voisines chargées, polarisées, ou magnétisées.

L'application d'un champ électrique alternatif à une suspension de particules peut engendrer le déplacement à la fois des particules et du fluide de différentes façons [Ronald 2010]. Afin de comprendre comment les particules et les fluides se déplacent dans les microsystèmes, il est important d'être en mesure de déterminer les caractéristiques des forces et/ou des couples qui régissent le comportement sous différentes conditions modélisées de la façon la plus réaliste possible.

1.1.1 Forces exercées sur les particules

Nous focalisons notre attention sur les forces déterministes¹, car ce sont les seules qui peuvent être contrôlées et exploitées pour déplacer des particules submicroniques ($10\text{nm} - 1\mu\text{m}$). Cela est évidemment justifié dans les applications qui nous intéressent, où l'effet des forces non-déterministes telle que celles liées au mouvement brownien est négligeable voire nul. Il est établi que ces forces non-déterministes prennent de plus en plus d'importance dans les applications où les phénomènes électromécaniques sont étudiés essentiellement à l'échelle nanométrique (nano-particules) [Pohl 1978]. Parmi les forces déterministes il y a notamment la force de gravité qui agit à la fois sur les particules et le fluide de suspension. Selon l'échelle de temps d'une expérience, cette force peut être ignorée ou utilisée comme, par exemple, pour produire la sédimentation sélective des particules en suspension dans un fluide. Pour les particules plus denses que le milieu environnant, la gravité tire vers le bas ces particules, mais pour les particules submicroniques ou les nano-particules cette force est généralement faible et n'a que peu ou pas d'effet au cours du temps dans une expérience typique. A titre d'exemple, considérons une sphère de latex de 500 nm de diamètre qui a une densité légèrement supérieure à celle de l'eau (1050 kgm^{-3} par rapport à 1000 kgm^{-3}). Dans le champ de gravité de la terre la particule ne se déplace que sur une distance de l'ordre de son diamètre à chaque minute, de sorte qu'après quelques minutes la particule ne se sera déplacée que de quelques micromètres. En revanche, une cellule biologique a dix fois ce diamètre et présente une densité plus grande et donc se déplace jusqu'à 100 fois plus rapidement, de sorte que la sédimentation complète des cellules à partir d'une suspension peut se produire en moins de quelques minutes. Pour la plupart des applications impliquant des particules submicroniques, la gravité a peu d'effet et les forces qui tendent à dominer dans les microsystèmes sont les forces visqueuses et les forces

1. Des aspects qui concernent des forces non déterministes telles que le mouvement brownien peuvent être traités séparément [Morgan 2003],

électriques. La force de freinage visqueux est caractérisée par la force de traînée de Stokes agissant sur la particule. Les petites particules ont une inertie faible, de sorte que, pendant le laps de temps d'une expérience, une modification de la vitesse de la particule peut seulement résulter d'un changement dans la force agissant sur la particule. Ainsi, si l'on peut mesurer la vitesse d'une particule en fonction du temps ou de la distance, on peut mesurer la force agissant sur elle. À noter que les forces électriques peuvent agir à la fois sur les particules et sur le fluide de suspension.

Les forces électriques majeures agissant sur les particules en suspension dans un fluide tel que les solutions aqueuses, sont l'électrophorèse (EP) et/ou la diélectrophorèse (DEP) [Ermolina 2004, Zhu 2009]. L'électrophorèse se produit en raison de l'action du champ électrique sur la charge électrique globale de la particule, tandis que la diélectrophorèse se produit seulement quand il y a des charges induites, et ses effets se traduisent en mouvement seulement dans un champ électrique non-uniforme (continu ou alternatif). Les champs électriques produisent aussi une force sur le milieu de suspension s'il y a présence de gradients de variation de la densité de charge du fluide. Si le champ électrique est non-uniforme et alternatif, il y a un déplacement constant du fluide. Si par contre le champ est alternatif et uniforme, ces charges se déplacent, mais l'effet net moyen sur un cycle est nul.

À noter que les ordres de grandeurs des trois forces généralement dominantes dans les bio-microsystèmes, à savoir le mouvement Brownien, la gravité et la diélectrophorèse, dépendent de plusieurs variables, principalement les dimensions respectives du système et de la taille de la particule, ainsi que certains paramètres électrocinétiques [Jones 1995, Di Biasio 2007, Jones 2003].

1.1.2 Polarisation et dispersion

La polarisation est le processus de redistribution des charges dans un matériau plongé dans un champ électrique, lorsque les charges positives et négatives sont centrées en différents endroits dans le matériau. Considérons une capacité formée par deux plaques similaires en supposant que le milieu entre elles est constitué du vide. Si on applique un potentiel à travers les deux plaques (disons de ± 1 V), il va y avoir accumulation de charges sur les plaques à cause de la différence de potentiel appliqué et du champ électrique associé ; la plaque de -1V va accumuler des électrons alors que celle du +1V va les perdre. Puisqu'il y a accumulation séparée de charges positives et négatives, on a induit un dipôle et la capacité est polarisée. Le processus de polarisation prend un temps fini pour avoir lieu, et quand le potentiel appliqué est supprimé, il faudra un temps fini pour que les charges reviennent à leur positions d'équilibre. Ce temps est une caractéristique du système et appelé dans la littérature temps de relaxation.

La polarisabilité est la mesure de la capacité d'un matériau à répondre à un champ électrique, et représente donc une mesure de la capacité d'un matériau à produire des charges aux interfaces. À basse fréquence², le mouvement des charges

2. Les basses fréquences correspondent à la gamme des fréquences inférieures à l'inverse du temps de relaxation du matériau considéré.

libres accompagne le changement de direction du champ. Cependant, quand la fréquence du champ augmente, il existe un point où le mouvement des charges n'a plus suffisamment de temps pour répondre. En haute fréquence, le mouvement des charges libres n'est plus le mécanisme dominant responsable de la charge de l'interface. Ce dernier est donné par la polarisation des charges de bord (permittivité). La différence (transition) entre ces états caractérisés par un mécanisme dominant est appelé une dispersion diélectrique (ou relaxation diélectrique). En général on distingue deux catégories de dispersion : celles qui se produisent à l'intérieur d'un même matériau (relaxation de Debye) [Gao 2003], et celles qui se produisent à l'interface de deux matériaux différents (de type Maxwell-Wagner)[Jones 2003, Fricke 1953].

Des examens approfondis des propriétés diélectriques des cellules biologiques ont conduit à la connaissance empirique des comportements de différentes permittivités (ou régions de dispersion) des cellules isolées en fonction des fréquences [Schwan 1983]. Des transitions existent dans le comportement électrique des cellules en fonction de la fréquence, appelées dispersion diélectrique. Ce phénomène de dispersion est interprété comme étant dû aux différents mécanismes de polarisation survenant dans les dispositifs diélectrophorétiques (microsystèmes) et dans les cellules biologiques, notamment dans les membranes cellulaires et les molécules du cytoplasme. Schwan [Schwan 1983] a appelé les trois grands régions de dispersion α , β , et γ et il a ajouté plus tard une faible région de dispersion, la dispersion δ (fig. 1.1).

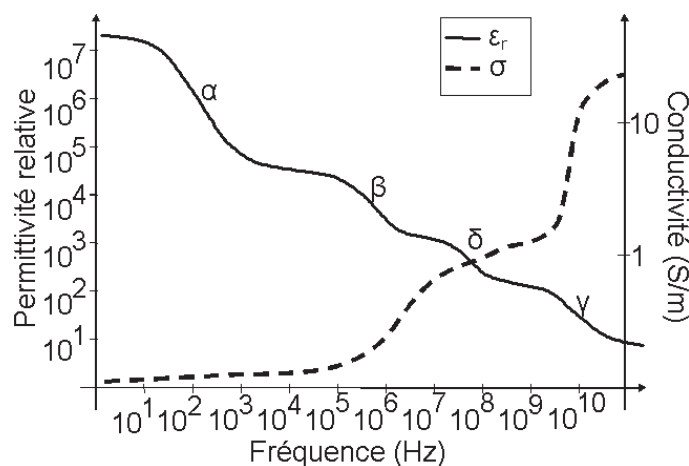


FIGURE 1.1 – Régions de relaxations électriques (ici exemple de tissus biologique) [Nicolini 1998].

Dans la plage des basses fréquences (Hz-kHz) intervient la dispersion α avec une polarisation et une relaxation des charges de la cellule. Le pic de la dispersion β

situé dans la gamme des radio-fréquences (kHz-MHz) est généralement attribué à la relaxation interfaciale de Maxwell-Wagner dans la direction perpendiculaire à la surface de la membrane. Cette relaxation interfaciale, est souvent empiriquement modélisée par une ou deux interfaces parallèles de type capacité-résistance en série avec une résistance ohmique pour l'électrolyte. Ce modèle est communément appelé modèle (RC) [Gimsa 1998], et modélise la charge capacitive transitoire, les courants ohmiques dans la double couche interfaciale et la membrane de la particule.

1.1.3 Polarisation interfaciale (et effet Maxwell-Wagner)

Alors que la dispersion de Debye est valide pour la réorientation des dipôles dans un matériau, il existe une autre classe de dispersion qui apparaît à l'interface entre deux matériaux diélectriques différents. Cette dispersion diélectrique diffère de la dispersion de Debye aussi bien par son caractère extrinsèque que par la gamme de fréquence associée, généralement plus faible. La modélisation des comportements diélectriques interfaciaux de ce type a été développée par Maxwell et publiée en 1873 dans son livre "A Treatise on Electricity and Magnetism". Cette théorie a été affinée plus tard par Wagner en 1914, et a pris le nom des deux scientifiques pour devenir la théorie de polarisation de Maxwell-Wagner.

Le phénomène de polarisation interfaciale de Maxwell-Wagner est le phénomène principal de polarisation qui apparaît lorsque plusieurs diélectriques sont soumis à un champ électrique externe dans leur milieu de suspension. Les interfaces de ces diélectriques vont jouer un rôle particulier dans le phénomène de polarisation. Supposons que ces diélectriques sont caractérisés par des permittivités et des conductivités électriques différentes. D'une manière générale, un milieu hétérogène, constitué de plusieurs de ces diélectriques, présente une permittivité électrique globale qui devient dépendante de la fréquence : on parle alors de dispersion diélectrique interfaciale [Pethig 1979]. Cette dépendance fréquentielle est la conséquence de l'accumulation de charges à l'interface entre les diélectriques. En général, le phénomène de polarisation interfaciale est dominant lorsque qu'un des milieux diélectriques est de petite dimension par rapport aux autres et qu'il possède une conductivité électrique bien plus faible que celle des autres. Ce cas de figure est typiquement celui rencontré avec les particules de latex ou les cellules biologiques en milieu aqueux.

De plus, la présence de nombreux ions dans le milieu de suspension aqueux (électrolyte) joue un rôle spécifique par le biais de la double couche électrique qui se crée autour de la particule (fig. 1.2). En effet, les ions présents dans la solution aqueuse sont attirés par les charges opposées accumulées en surface de la particule du fait de sa polarisation. Il se forme ainsi, autour de la particule, un nuage de contre-ions (double couche) qui, sous l'effet du champ électrique, se déplacent et contribuent à augmenter fortement la polarisation de la particule associée à cette atmosphère ionique. La double couche étant souvent de très faible épaisseur (quelques nanomètres), le phénomène de polarisation interfaciale peut être intégré dans une contribution surfacique à la conductivité électrique équivalente de la particule. C'est le cas par exemple des particules de latex immergées dans un environnement électrolytique

donné, qui sont non-conductrices et possèdent donc une conductivité volumique quasiment nulle [Green 1997] ; La double couche électrique pourra être intégrée dans la conductivité surfacique (voir la section 4.2). Pour les cellules biologiques, les mesures de leurs propriétés électriques étant faites en présence du fluide de suspension, nous pouvons supposer, en première approximation, que les phénomènes de polarisation interfaciale sont pris en compte au travers de ces mesures et intégrés directement dans les caractéristiques électriques.

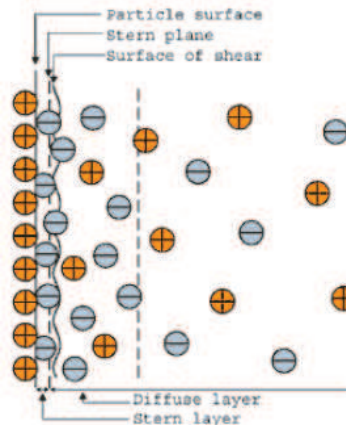


FIGURE 1.2 – Structure de la double couche électrique se formant autour de la particule.

1.1.4 Polarisabilité et théorie de DEP classique

La théorie de la diélectrophorèse (DEP) classique se base sur les mécanismes de polarisation des particules pour déterminer les mouvements diélectrophorétiques des particules et leur comportement de dispersion diélectrique en fonction de leur conductivité par rapport à leur milieu de suspension.

Si la particule diélectrique considérée est sphérique et homogène, le facteur de Clausius-Mossotti $\underline{K}$ peut être utilisé pour décrire la polarisabilité effective $\bar{p}$ [Jones 2003, Gascoyne 2002, Zimmermann 1996] :

$$\underline{K}(\omega) = \frac{\underline{\varepsilon}_p - \underline{\varepsilon}_m}{\underline{\varepsilon}_p + 2\underline{\varepsilon}_m} \quad (1.1)$$

où $\underline{\varepsilon}$ est la permittivité complexe de la forme $\underline{\varepsilon} = \varepsilon - i\sigma/\omega$, elle dépend donc de la fréquence f (avec $\omega = 2\pi f$) et de la conductivité électrique, σ , du milieu (ici les indices p et m indiquent respectivement la particule et le milieu de suspension). La théorie de la DEP classique (ou DEP conventionnelle) est basée sur la représentation dipolaire de la polarisation (théorie de Clausius-Mossotti). Elle permet d'écrire la

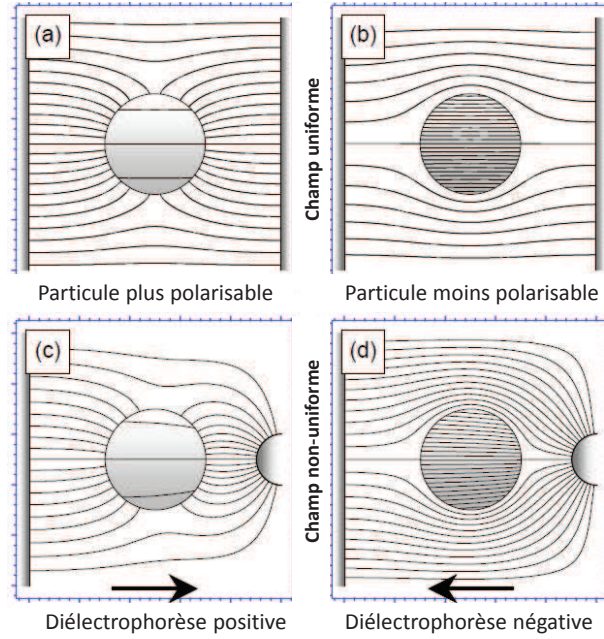


FIGURE 1.3 – Lignes de champ électrique pour quatre situations où la particule est plus ou moins polarisable que son milieu de suspension, dans un champ électrique uniforme ou non uniforme [Morgan 2003]

force $\overline{F}$ et le couple $\overline{T}$ appliqués sur une particule diélectrique plongée dans un champ électrique $\overline{E}$, comme [Jones 2003, Stratton 1941]

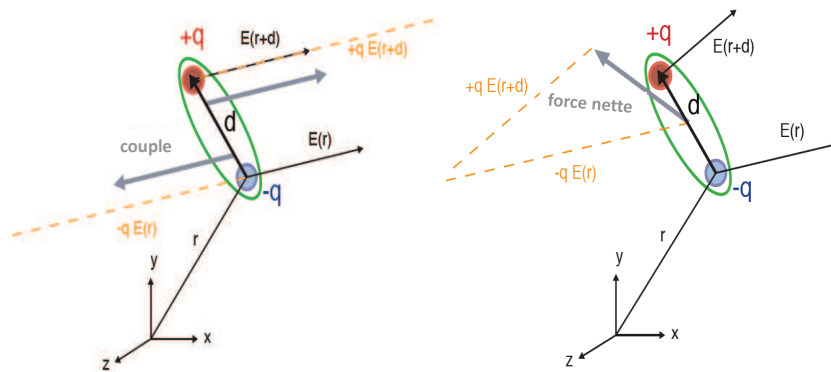


FIGURE 1.4 – Force appliquée sur un dipôle par un champ électrique. La force nette est le résultat de l'addition des deux vecteurs $+q\mathbf{E}(\mathbf{r}) - q\mathbf{E}(\mathbf{r} + \mathbf{d})$ [Morgan 2003]

$$\overline{F} = (\overline{p} \cdot \nabla) \overline{E} \quad (1.2)$$

$$\overline{T} = \overline{p} \times \overline{E} \quad (1.3)$$

avec $\overline{p}$ le moment dipolaire qui sera traité dans les paragraphes suivants.

Diélectrophorèse L'expression de la force diélectrique moyenne exercée sur une particule diélectrique sphérique et homogène dans un champ alternatif s'écrit [Jones 1995] :

$$\langle \overline{F}_{DEP} \rangle = 2\pi\epsilon_m a^3 \text{Re}(\underline{K}(\omega)) \nabla ||\overline{E}_{rms}||^2 \quad (1.4)$$

où a est le rayon de la particule et $\overline{E}_{rms}$ est la racine carré de l'amplitude du champ électrique alternatif appliqué et $\langle f(t) \rangle$ représente la moyenne temporelle de la fonction $f(t)$.

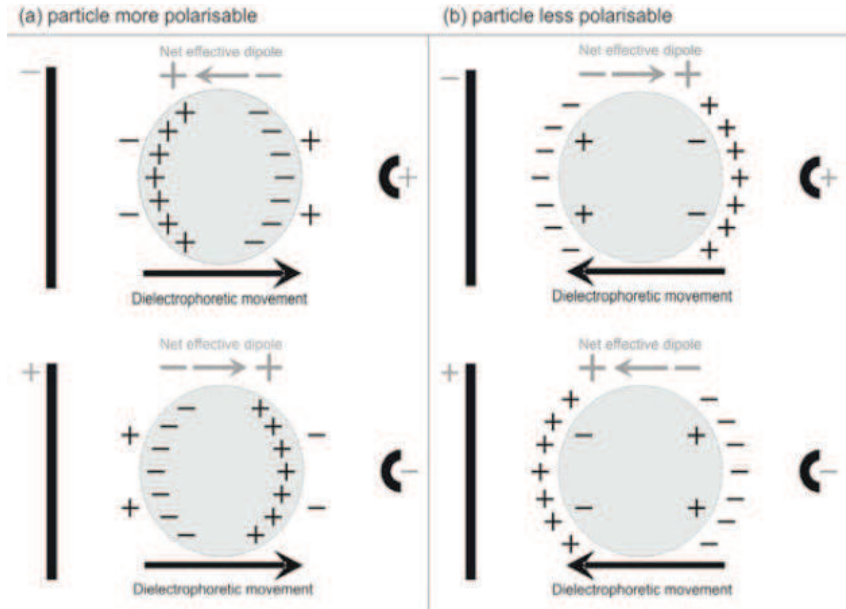


FIGURE 1.5 – Polarisation de la particule dans un champ électrique. Cas de particules plus polarisables et moins polarisables que leurs milieux de suspension [Morgan 2003]

La diélectrophorèse naît de l'interaction du moment dipolaire avec le champ électrique externe appliqué. Dans un gradient de champ non nul, une force nette est exercée sur la particule polarisée, engendrant son déplacement vers les régions de champ électrique élevé ou faible selon les propriétés de la particule et de son milieu de suspension (fig. 1.5). Lorsque la particule est plus conductrice que le milieu externe, $\text{Re}[\underline{K}(\omega)]$ est positif et le moment dipolaire résultant provoque une force vers les régions de champ électrique élevé. Il convient de noter que la densité du champ est plus élevée aux points de forte courbure des électrodes et l'attraction vers ces régions est connue sous le nom de DEP positive. Lorsque la particule est moins conductrice

que son milieu de suspension, $Re[\underline{K}(\omega)]$ est négatif et la force dipolaire est dirigée vers les régions de champ faible. Ce comportement est connue sous le nom de DEP négative (fig. 1.6).

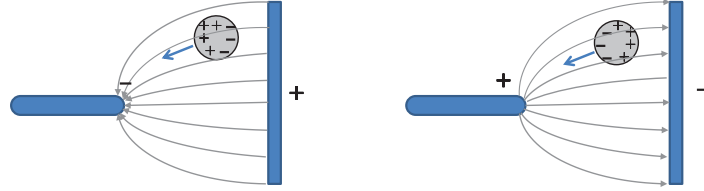


FIGURE 1.6 – Déplacement de la particule vers les régions de gradient de champ électrique élevé.

1.1.4.1 Lévitiation

Un cas particulier de la DEP classique est la lévitation [Jones 1990] (fig. 1.7). La diélectrophorèse permet alors de créer un effort suffisant pour maintenir en lévitation une particule verticalement à l'inverse de la force de gravitation et de la garder en équilibre à proximité des électrodes [Jones 1994]. L'obtention des spectres diélectriques de cellules isolées en les faisant léviter dans un champ non-homogène permet de connaître la capacité de la membrane de ces particules en évaluant la partie réelle du facteur de Clausius-Mossotti sur un domaine de fréquences donné [Jones 1995].

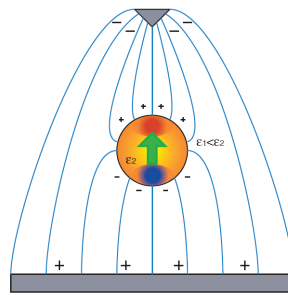


FIGURE 1.7 – Illustration du phénomène de lévitation d'une particule diélectrique dans un système de pointe-plan.

Ondes progressives Notons que la simplification de l'équation (1.2) à l'équation (1.4) est basée sur la condition que le champ électrique non uniforme ne présente

pas une phase qui dépende de la position spatiale. Dans le cas contraire, pour les champs électriques avec une dépendance spatiale de la phase tel que celui créé en utilisant la structure d'électrodes de la figure (fig. 1.8), l'équation (1.2) donne :

$$\begin{aligned} \langle \bar{F}_{DEP} \rangle = & 2\pi\epsilon_m a^3 \text{Re}(K(\omega)) \nabla ||\bar{E}||^2 \\ & - 2\pi a^3 \text{Im}(K(\omega)) (\nabla \times (\text{Re}(\bar{E}) \times \text{Im}(\bar{E}))) \end{aligned} \quad (1.5)$$

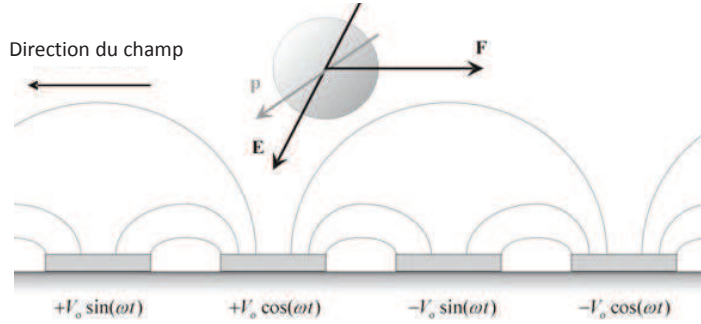


FIGURE 1.8 – Diagramme schématisant un système d'électrodes pour la diélectrophorèse à onde progressive linéaire avec les signaux consécutifs déphasés nécessaires pour générer le champ électrique à onde progressive.

L'équation (1.5) montre que la force diélectrophorétique est constituée de deux composantes ; le premier terme est l'expression de la force DEP classique et le second terme est appelé force diélectrophorétique à onde progressive (twDEP). Pour que la force twDEP soit effective, la fréquence de la tension appliquée aux électrodes et la conductivité du milieu doivent être choisies de telle sorte que les deux conditions suivantes soient vérifiées : 1) La particule doit subir une force de diélectrophorèse négative pour léviter au dessus des électrodes ; 2) La partie imaginaire du facteur de Clausius-Mossotti doit être non-nulle.

Electrorotation L'électrorotation (ROT) a été observée pour la première fois en 1892 par Arno et en 1893 par Weiler pour des champs électriques statiques [Jones 1995]. Les premières expériences modernes ont été menées au début des années 1980 [Holzapfel 1982, Arnold 1998]. Aujourd'hui, l'électrorotation est largement utilisée pour la caractérisation électrique de cellules uniques. Les mesures d'électrorotation sont réalisées sur des particules diélectriques en suspension soumises à des champs électriques alternatifs tournants. Le champ électrique induit un dipôle qui essaie continûment de s'aligner avec le vecteur du champ tournant (fig. 1.9.b) provoquant la rotation de la particule dans le même sens (co-rotation) que le champ extérieur ou dans le sens opposé (anti-champ) à celui-ci. Le sens de rotation dépend du retard de la phase entre le champ et le dipôle induit. En effet, quand un

dipôle se trouve dans un champ, l'interaction entre le champ électrique et le moment dipolaire conduit à un couple de rotation sur la particule (fig. 1.9) et l'écart temporel (ou retard de phase) entre l'application du champ électrique et la mise en place du moment dipolaire font que la particule manipulée suit le mouvement du champ électrique avec un certain décalage temporel ; la particule subit alors un couple constant (1.6) et tourne autour de son axe de rotation. Le couple est nul quand l'angle de phase entre le vecteur de polarisation de la particule et le champ électrique appliqué est nul et atteint son maximum quand l'angle de phase atteint 90 degrés. En pratique le couple de rotation électrique est calculé en considérant un champ électrique tournant de la forme $E = ||E||(\mathbf{x} - i\mathbf{y})$ et la moyenne temporelle de ce couple de rotation pour une particule sphérique est donnée par :

$$\langle T_{ROT} \rangle = -4\pi\epsilon_m a^3 \text{Im}[K(\omega)] ||E||^2 \mathbf{z} \quad (1.6)$$

où $\mathbf{z}$ est le vecteur unitaire perpendiculaire au plan déterminé par $\mathbf{x}$ et $\mathbf{y}$.

Comme ce couple est proportionnel à la partie imaginaire du coefficient de Clausius-Mossotti, des informations importantes sur les caractéristiques diélectriques des cellules individuelles peuvent être récupérées (section 4.3.1). A partir de (1.6), on peut affirmer en effet que la particule tourne dans ou contre le sens du champ électrique si la partie imaginaire du coefficient de Clausius-Mossotti est négative ou positive respectivement. Dans un milieu visqueux, la particule tourne à une vitesse angulaire constante. Le couple T_{ROT} est lié à cette vitesse angulaire Ω_{ROT} par [Arnold 1988] :

$$\Omega_{ROT} = \frac{\langle T_{ROT} \rangle}{f_\theta} \quad (1.7)$$

où $f_\theta = 8\pi\eta a^3$ est le facteur de force de frottement subit par la particule sphérique, avec η la viscosité du milieu de suspension.

Dans la littérature, les montages expérimentaux avec quatre [Hughes 1998] ou trois [Arnold 1998] électrodes indépendantes ont été présentés. Les spectres d'électrorotation de différents types des cellules [Arnold 1982, Holzel 1997, Yang 1999], de cellules vivantes/mortes [Huang 1992], de cellules avec des membranes enrichies en ions [Huang 1992] et de cellules osmotiquement gonflées¹ [Kiesel 2006] ont été évalués.

Signature diélectrophorétique La spectroscopie diélectrophorétique est un outil puissant pour l'investigation des propriétés électriques des particules (biologiques en particulier) en suspension. À l'heure actuelle, il existe de nombreuses approches pour la mesure diélectrique de suspensions biologiques. Plusieurs états des lieux de cette technique sont disponibles dans la littérature [Pethig 1987, Ronald 2010, Davey 1995, Asami 2002, Jones 1995]. Les spectres de fréquence de la force DEP et du couple ROT (donnés par la fig. 1.10) peuvent être exploités pour obtenir des

1. gonflement de la cellule sous l'effet de la pression osmotique ce qui se produit suite à la présence de différence de concentrations qui favorise l'infiltration de cet eau vers l'intérieur de la cellule.

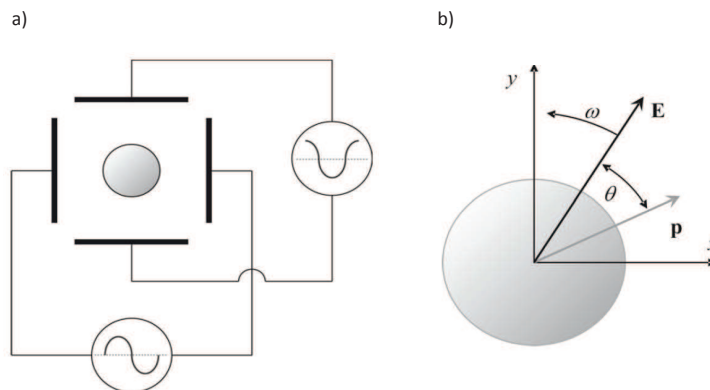


FIGURE 1.9 – a) Diagramme schématique du système d'électrorotation ; quatre signaux déphasés de 90 degrés sont appliqués aux quatre électrodes b) Diagramme schématique montrant le décalage entre un champ électrique tournant et le moment dipolaire induit d'une particule.

informations sur les propriétés diélectriques de particules en adoptant par exemple les diagrammes d'Argand [Wang 1992], où les parties réelles et imaginaire du facteur de Clausius-Mossotti sont représentées dans le plan complexe en fonction de la fréquence. Le spectre diélectrophorétique permet de prévoir le comportement de la particule en présence d'un champ électrique non homogène dans son milieu de suspension. Il représente l'évolution des parties réelle et imaginaire du facteur de Clausius-Mossotti $K(\omega)$ (ou de la vitesse de déplacement observée) en fonction des fréquences. Son allure reflète différents aspects de la structure et de la composition cellulaire, et permet d'étudier la dispersion diélectrique de la particule manipulée. Pour une particule sphérique multicouche, chaque pic dans le spectre (ou la partie imaginaire du facteur de Clausius-Mossotti) correspond à une interface entre deux des différents compartiments de la structure multicouche.

1.2 Champ électrique et cellules biologiques

Le cas des cellules biologiques occupe une place particulière dans les applications de la théorie électromécanique et électrocinétique. On trouve dans la littérature une dizaine de modèles selon le type de cellules manipulées et les microsystèmes dans lesquels elles sont placées. Néanmoins des modèles standards sont largement adoptés pour représenter électriquement la cellule biologique.

1.2.1 Modèle électrique de cellule

Un modèle électrique simple de la cellule, utilisé couramment dans la littérature [Valero 2010, Morgan 2007, Ellappan 2005, Amin 2008, Jones 2003, Cole 1928], la décrit comme une sphère représentant le cytoplasme, recouverte d'une couche uni-

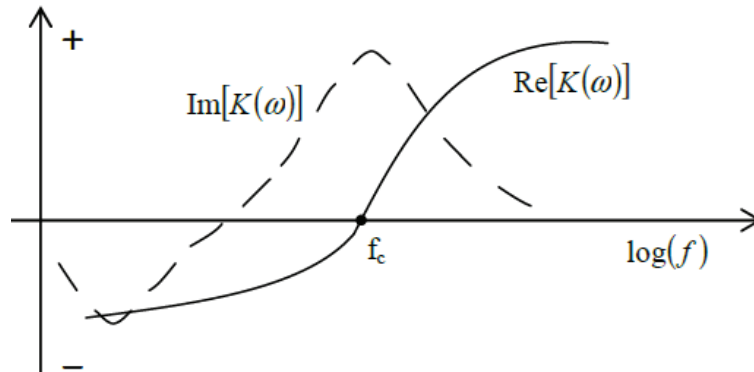


FIGURE 1.10 – Evolution typique des parties réelle et imaginaire du facteur de Clausius-Mossotti en fonction de la fréquence pour une cellule vivante dans un milieu aqueux peu conducteur.

forme correspondant à la membrane cellulaire (fig.1.11). Le cytoplasme est modélisé comme un milieu homogène avec une permittivité et une conductivité, tandis que la membrane est décrite comme une coque avec des propriétés électriques surfaciques (capacitance et permittivité) (fig. 1.11) définies par :

$$\varepsilon_p = \frac{C_{mem} R \varepsilon_m}{C_{mem} R + \varepsilon_i} \quad (1.8)$$

où l'indice "mem" correspond à la membrane, "i" correspond au milieu intérieur et R le rayon de la particule.

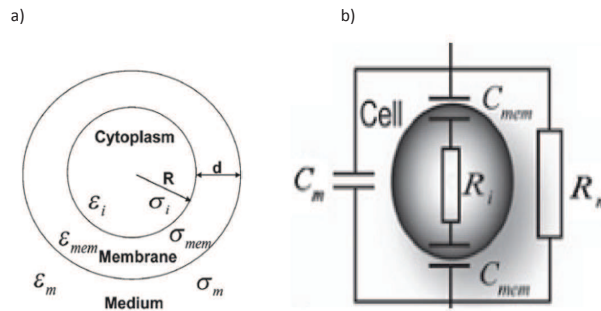


FIGURE 1.11 – **a.** Modèle monocouche d'une cellule de forme supposée sphérique **b.** Modèle de circuit équivalent pour une cellule en suspension.

1.2.2 Le modèle à cellule isolée

L'approche classique dans l'étude électrique des cellules biologiques consiste généralement à travailler sur un grand nombre de cellules et à accéder aux paramètres pertinents à partir d'une mesure globale, moyennée sur la population cellulaire étudiée. Même si cette méthode reste largement utilisée dans les expériences classiques, l'approche à "cellule isolée" (single-cell) gagne de plus en plus de terrain car elle permet de mieux rapprocher les études expérimentales avec la modélisation. Une application de la spectroscopie diélectrique pour des cellules individuelles a été réalisée en premier lieu avec des oeufs par Cole et Guttman [Cole 1942] avant de devenir un outil puissant pour la caractérisation des particules diélectrique en général et les cellules biologiques en particulier [Morgan 2007, Schnelle 1999a]. Comme l'analyse à cellule isolée ne nécessite pas de prendre en compte les interactions électriques entre les cellules, l'équation de mélange de Wagner peut être utilisée pour l'analyse globale [Asami 1984]. Ainsi l'équation de Pauly-Schwan basée sur l'équation de mélange de Wagner a permis de simuler le comportement diélectrique de membranes bicouches sphériques et des microcapsules simples [Asami 1984]. Cependant la technique de mesure utilisée dans ces travaux, pour les oeufs simples et les cellules modèles, est difficile à appliquer aux cellules isolées de taille ordinaire. Des méthodes électromécaniques peuvent alors être utilisées pour étudier les propriétés électriques de ces cellules isolées [Jones 1995], en utilisant leurs réponses dynamiques à l'application d'un champ électrique alternatif, dans le cadre de la diélectrophorèse [Gagnon 2011, Pohl 1978, Pethig 1992] et dans celui de l'électrorotation [Voyer 2010, Zimmermann 1996, Han 2013, Halzel 1999, De Gasperis 1998].

1.2.3 Formule de mélange de Maxwell

Pour une suspension de fraction volumique faible, les propriétés des particules sont reliées aux propriétés de la suspension à travers la théorie de mélange de Maxwell (développée par Maxwell et Wagner). Il a été montré que cette approche fonctionne bien pour les fractions volumiques inférieures à 10 pour cent [Hanai 1975].

La théorie du mélange de Maxwell fournit pour une suspension de N particules la permittivité équivalente d'un système homogène, elle est donnée par [Hughes 2003] :

$$\varepsilon_{mix} = \varepsilon_m \frac{1 + 2\varphi_v \underline{K}}{1 - \varphi_v \underline{K}} \quad (1.9)$$

où $\varphi_v = N \frac{a^3}{R^3}$ est la fraction volumique des particule par rapport au milieu de suspension, $\underline{K}$ est le facteur de Clausius-Mossotti (1.1.4), et ε_m la permittivité du milieu de suspension.

Cette approximation est valide sous la condition que la fraction volumique soit faible i.e. $\varphi_v \ll 1$. Des développements avancés ont été proposés pour prendre en compte les effets de concentrations élevées de particules [Hanai 1975, Zhang 1983]. Des mesures issues de la spectroscopie diélectrique de la variation de la permittivité complexe d'une suspension de particules diélectriques en fonction de la fréquence

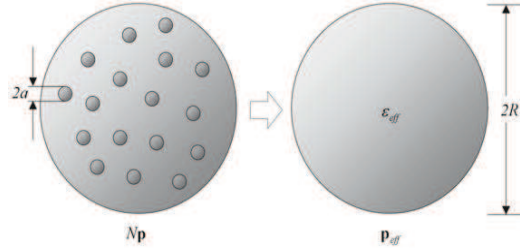


FIGURE 1.12 – Description schématique illustrant comment le mélange de Maxwell permet de traiter une suspension de N particules comme une sphère homogène.

permettent alors de déterminer la polarisabilité effective et le moment dipolaire effectif des particules individuelles.

1.2.4 Caractérisation des cellules biologiques

A partir d'un modèle de polarisabilité d'une cellule biologique et de spectres diélectrophorétiques, il est possible de caractériser électriquement la cellule étudiée. La polarisabilité d'une cellule est due principalement aux propriétés électriques de sa paroi cellulaire (si elle est présente), de sa membrane, et/ou de son cytoplasme, en fonction de la fréquence du champ appliqué. Les effets de polarisabilité se manifestent dans le facteur de Clausius-Mossotti.

Dans la pratique, il est difficile de mesurer la force diélectrophorétique sur une particule pour plusieurs raisons, comme l'effet de l'écoulement induit du fluide de suspension, l'interaction d'une particule avec une surface chargée, ou encore le mouvement brownien constaté pour des particules de petite taille. Une solution pratique consiste à relever des valeurs particulières dans le spectre diélectrophorétique, appelées valeurs caractéristiques. Ces valeurs identifiables et quantifiables contiennent un nombre important d'informations sur les propriétés électriques de la particule manipulée (constantes électriques, conductivité,...), sur sa forme (sphérique, non-sphérique, isotropie...) et sa structure (nombre de couches, compartiments etc...). Ainsi à la fréquence à laquelle le spectre DEP croise la valeur zéro (ou fréquence de coupure) [Green 1997, Hughes 1999, Jones 1995], la partie réelle de la polarisabilité des particules est la même que celle du milieu de suspension et la force diélectrophorétique est nulle.

L'enjeu du problème de caractérisation des cellules biologiques est donc de partir d'un modèle décrivant les phénomènes diélectrophorétiques mis en jeu (le plus représentatif possible) pour identifier les propriétés électriques de ces cellules. Pour y parvenir deux approches sont classiquement utilisées. La première consiste à établir un spectre diélectrophorétique théorique et à le confronter aux résultats expérimen-

taux, en utilisant des techniques d'optimisation. La deuxième consiste à identifier les valeurs caractéristiques du spectre obtenu expérimentalement, pour remonter aux propriétés implicitement contenues dans ces valeurs caractéristiques. Ce lien est décrit par les modèles issus du problème direct. Nous y reviendrons avec plus de détail dans la partie 4.3.1 notamment avec l'électrorotation.

1.2.5 Méthode par mesure d'impédance

L'estimation des propriétés électriques des particules peut aussi être approchée par des mesures directes d'impédance électrique sur une gamme étendue de fréquences. A la différence de l'approche par le spectre diélectrophorétique qui se base sur le rapprochement des données expérimentales et de modélisation issues de la diélectrophorèse ou de l'électrorotation, l'approche par impédance électrique se base sur des mesures directes d'impédance tout en modélisant électriquement les passages de courant autour et à travers la particule en question. Avec un modèle électrique équivalent de base d'une cellule biologique en suspension dans un milieu tampon, un nombre fini de mesures à certaines fréquences est suffisant pour identifier les différents types des cellules ayant des signatures électriques caractéristiques. Dans la littérature les mélanges d'un grand nombre de particules en suspension dans de gros volumes ont été caractérisés [Asami 1996].

1.3 Au delà de la théorie classique de Clausius-Mossotti

Cependant le facteur de Clausius-Mossotti ne prend pas en compte l'effet de la double couche électrique créée autour de la particule, notamment au niveau des relaxations α et β . Dans plusieurs cas, la mobilité diélectrophorétique des particules biologiques ne peut donc être quantitativement décrite par cette théorie classique. C'est le cas de certaines cellules biologiques comme les globules rouges, où la polarisation est due à la recharge de la double couche avec des ions par le champ extérieur ; Les ions chargés sur la double couche finiront par atteindre des quantités excessives et vont ainsi participer à dévier le champ externe.

Les manipulations diélectrophorétiques de cellules biologiques visant à déterminer les propriétés diélectriques dépendants de la fréquence ont été rapportées dans de nombreux travaux [Jones 2003, Arnold 1982, Ronald 2010]. Cependant, les tentatives pour modéliser les spectres de dispersion (relaxation) diélectrique des globules rouges en utilisant la théorie de DEP classique n'ont permis qu'une estimation grossière [Gimsa 2001, Sukhorukov 2001]. Ainsi la prise en compte des propriétés ohmiques et capacitives de la double couche électrique et de la membrane des cellules, en plus de leur polarisabilité diélectrique, s'est imposée pour améliorer la modélisation.

1.4 Effets électrocinétiques

Jusqu'à présent nous nous intéressions aux forces (et couples) diélectrophorétiques comme effets de l'interaction champ électrique-particules dans leurs micro-systèmes. Comme souligné précédemment, cet aspect ne permet pas seul de décrire et de modéliser les processus rentrant en jeux lors de la manipulation des particules dans les micro-systèmes. Dans cette section nous nous intéresserons aux effets électrocinétiques, leur description, leur rôle et leur contribution dans les phénomènes étudiés.

L'interaction des fluides avec une surface chargée (naturellement ou induite) est un aspect souvent négligé dans la modélisation des phénomènes diélectrophorétiques. Une conséquence importante de l'existence de charges électriques sur la surface des particules (à l'interface) est l'interaction de ces charges avec le champ électrique appliqué. Ces effets sont définis collectivement par "effets électrocinétiques". Le chapitre 4 revient sur ces aspects électrocinétiques dans le cas de l'électrorotation. Malgré le fait que les premières observations des phénomènes électrocinétiques remontent aux études menées par Reuss en 1809, les premiers développements théoriques sont attribués à Helmholtz (1879) et Smoluchowski (1903). Après ces premiers travaux, cette théorie a été synthétisée par Dukhin et Derjaguin (1974). Une attention particulière a depuis été consacrée à quatre grands phénomènes électrocinétiques (illustrés dans la (fig. 1.13)), qui sont les plus présents dans les applications de manipulation des particules diélectriques dans les micro-systèmes :

- l'électrophorèse : mouvement d'une surface chargée par rapport à un liquide stationnaire suite à l'application d'un champ électrique. L'électrophorèse est un des phénomènes couramment utilisés dans la séparation des cellules biologiques [Korohoda 2008] ;
- l'électro-osmose : mouvement d'un liquide par rapport à une surface chargée (stationnaire) suite à l'application d'un champ électrique ;
- le potentiel de sédimentation : champ électrique créé quand des particules chargées se déplacent par rapport à un fluide stationnaire ;
- le potentiel d'écoulement : champ électrique généré lorsqu'un liquide est forcé à s'écouler le long d'une surface stationnaire chargée.

Nous nous concentrerons dans ce travail sur les deux premiers phénomènes, électrophorèse et électro-osmose. Dans cette partie, après avoir décrit les phénomènes d'interface en général, nous nous focaliserons sur la description du phénomène de double couche électrique, qui donne lieu à l'électrophorèse et à l'électro-osmose.

1.4.1 Cellules biologiques et phénomènes d'interface

Un modèle précis pour les cellules biologiques dans un milieu de suspension doit prendre en compte les mécanismes de conduction à l'intérieur et à l'extérieur de la cellule et pour des fréquences au-dessus du MHz. La façon la plus simple de représenter le transport de la charge ionique est d'employer un modèle ohmique, en grande partie en raison de leur structure et à cause de la haute conductivité élec-

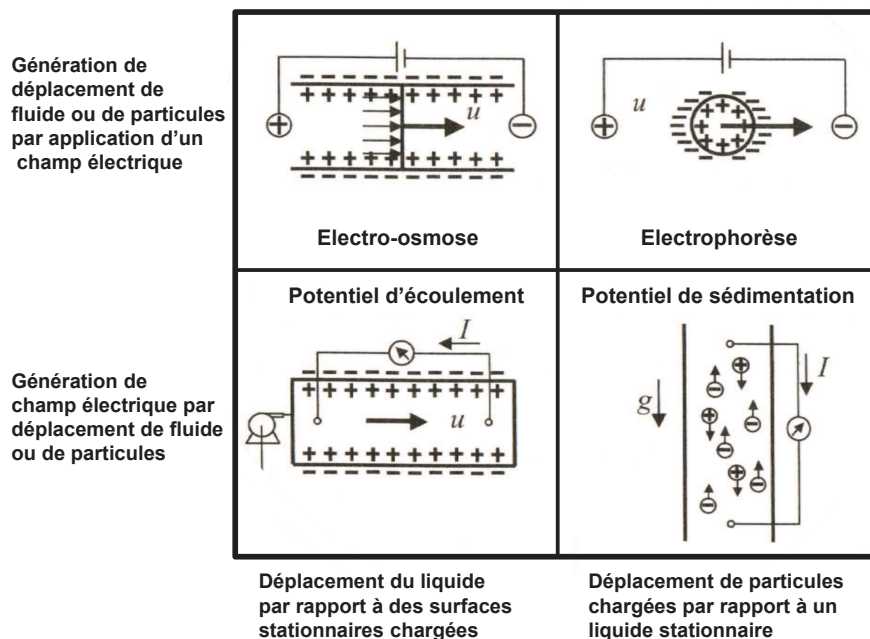


FIGURE 1.13 – Phénomènes électrocinétiques dépendant de la double couche électrique.

trique interne et cette approximation suffit généralement à l'intérieur de la cellule. Cependant un modèle ohmique est moins efficace pour représenter les milieux électrolytiques aqueux, milieux dans lesquels les cellules sont généralement suspendues. Le problème est que les phénomènes liés à la double couche électrique qui se forme autour de la cellule introduisent des modifications complexes de la charge mobile extérieure au niveau de la paroi cellulaire [Thoen 1989].

Généralement les particules portent une charge nette associée à la présence de polymères chargés et/ou des groupes acides et basiques ionisables sur leur surface. Elles peuvent acquérir une charge surfacique au contact d'un électrolyte suite à un effet d'ionisation ou d'adsorption d'ions ou des deux. La charge fixe à la surface de la particule peut influencer son comportement diélectrophorétique par électrophorèse (voir 1.4.3), par des dispersions (relaxations) de contre-ions et par conduction de la double couche qui se forme.

1.4.2 Double couche électrique

Le développement d'une charge nette à la surface des particules affecte la distribution des ions dans le voisinage de la région interfaciale, ce qui entraîne une augmentation de la concentration des contre-ions, i.e des ions de charge opposée à celle de la particule, à proximité de la surface. Ainsi une double couche électrique est formée autour de la particule. Un traitement complet de la polarisation de la double couche est donnée par Lyklema [Lyklema 1995]. Si nous y revenons plus tard dans

l'étude électrocinétique au chapitre 4, nous pouvons résumer sa description ainsi : la double couche électrique peut être considérée comme étant composée de deux classes de contre-ions, ceux qui sont fortement attirés par les charges fixes sur la surface des particules (dite couche de Stern), et ceux qui sont moins fortement associés (couche diffuse externe). La frontière entre ces deux populations (couches) de contre-ions est appelée "plan de glissement" (ou aussi plan de cisaillement). Le potentiel au niveau de ce plan est appelé potentiel zêta (voir paragraphe 1.4.4). C'est au niveau de ce plan de glissement que, au cours de l'électrophorèse, l'ensemble constitué de la particule chargée et de sa couche de Stern se sépare de la population externe (diffuse) des contre-ions (fig. 1.14).

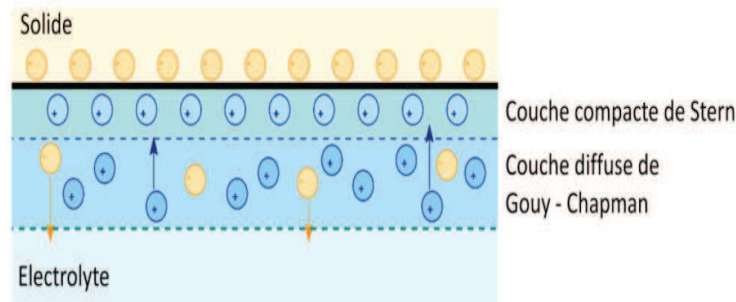


FIGURE 1.14 – Structure de la double couche électrique.

Conductivité L'épaisseur de la double couche dépend de la concentration des ions dans la solution (milieu externe). Plus la force appliquée par les ions dans le milieu externe est élevée, plus la double couche devient comprimée. La valence des ions va également influencer l'épaisseur de la double couche ; ainsi un ion trivalent comme le PO_4^{3-} va compresser la double couche électrique de façon plus importante qu'un ion monovalent comme le Na^+ . L'influence de la double couche électrique sur le comportement diélectrophorétique est particulièrement importante pour les petites particules, où l'épaisseur de la double couche électrique peut approcher, voire dépasser, les diamètres de la particule. La mobilité induite par le champ électrique des contre-ions dans la double couche donne lieu à une conductance de surface S^σ dont l'influence sur la polarisabilité globale peut dépasser dans certains cas celle de la conductivité volumique. La conductivité totale d'une particule peut alors être décrite comme la somme de sa conductivité volumique et de sa conductivité surfacique.

$$\sigma_p = \sigma_{volumique} + \frac{2S^\sigma}{a} \quad (1.10)$$

Cette relation montre que l'influence de S^σ peut dominer la conductivité volumique pour les particules de très petite taille. Les contre-ions sont plus mobiles dans la couche diffuse que dans la couche de Stern, et contribuent séparément à

l'amplitude globale de S^σ et par conséquent au comportement diélectrophorétique des nanoparticules.

1.4.3 Electrophorèse

L'électrophorèse a été introduite et développée vers la fin des années 30 par Arne Tiselius pour la séparation des mélanges colloïdaux et plus tard pour les protéines². Le principe de l'électrophorèse peut être résumé comme suit : lorsqu'un champ électrique est appliqué dans une électrolyte, les particules chargées en suspension dans l'électrolyte sont attirées vers l'électrode de charge opposée. Les forces visqueuses qui agissent sur ces particules ont tendance à s'opposer à ce mouvement. Lorsque l'équilibre est atteint entre ces deux forces opposées, les particules se déplacent avec vitesse constante (fig. 1.15). La vitesse est fonction de l'amplitude du champ électrique, de la constante diélectrique du milieu, de la viscosité du milieu et du potentiel zêta. La vitesse d'une particule dans un champ électrique unité est appelée mobilité électrophorétique. Le potentiel zêta est lié à la mobilité électrophorétique par l'équation de Henry (traité plus loin dans le chapitre).

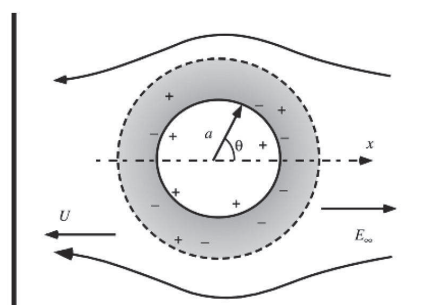


FIGURE 1.15 – Illustration du phénomène d'électrophorèse.

1.4.4 Electro-osmose

Quand un champ électrique extérieur est appliqué, le fluide chargé dans la double couche électrique acquiert une énergie qui est transmise aux couches adjacentes du fluide à travers l'effet de viscosité. Ainsi, si la phase liquide est en mouvement, elle engendre un écoulement du fluide. Cet effet est connu sous le nom d'électro-osmose (parfois appelée électroendosmose)(Probstein 1994). L'électro-osmose a été identifiée la première fois par Reuss (1809) qui a démontré que l'eau pouvait s'infiltrer à travers les diaphragmes d'argile poreux suite à l'application d'un champ électrique extérieur. L'électro-osmose peut être vue en quelques sorte comme le phénomène inverse de l'électrophorèse, dans le sens où elle représente le déplacement induit électriquement d'un fluide relativement à une surface solide stationnaire.

2. Cela lui a valu le prix Nobel de chimie en 1948

Electro-osmose à champ électrique alternatif L'utilisation d'un signal alternatif et d'une géométrie d'électrodes adaptée permet de générer un déplacement (induit électriquement) du fluide par effet du champ électrique appliqué et de la charge libre induite dans la double couche électrique sur la surface solide chargée (particules et électrodes). En effet, l'application d'un champ électrique alternatif génère des charges à la surface de la particule et des électrodes (les surfaces chargées dans le système) et provoque de la même façon un excès de charge dans la couche diffuse. Un écoulement du fluide de l'électrolyte induit par le mouvement de la partie du fluide située dans la double couche électrique se produit ainsi dans le système. Si les tensions appliquées aux électrodes sont alternatives, tant le champ électrique que la charge globale dans les fines couches à hauteur des électrodes sont alternatifs, du fait de la migration alternative des ions. La force qui s'exerce sur les ions présents au voisinage des électrodes garde un signe constant. Elle oscille autour de sa valeur moyenne non nulle. Aux fréquences élevées, comme les ions ne peuvent pas migrer vers les électrodes de signe opposé de façon instantanée, les couches minces électriquement chargées ne peuvent plus se former au voisinage des électrodes et il n'y a donc plus de forces électriques de volume.

Les phénomènes de charges induites et d'interactions électrocinétiques résultantes ne sont pas limités aux interfaces fluide-particule. Ils se produisent également aux interfaces des électrodes sous tension [Ervenka 2009], des éléments biologiques [Wu 2005] ou des électrodes non alimentées [Lastochkin 2004]. Nous nous limiterons toutefois, dans ce travail de thèse, au cas particulier des interactions fluide-particule, qui ont une contribution directe dans les phénomènes modélisés en basses fréquences. De plus, la particule dans les applications visées est placée loin des électrodes. Dans ces cas l'alimentation alternative des électrodes est à l'origine des interactions électromécaniques induites, on parle alors d'électro-osmose à courant alternatif.

Potentiel zéta Dans la couche diffuse de la double couche électrique, il existe une frontière théorique au-delà de laquelle les ions de la double couche et la particule constituent une entité stable, comme mentionné dans la sous section 1.4.2. Le potentiel à cette limite (surface de cisaillement hydrodynamique) est le potentiel zéta (fig. 1.16).

A noter que l'ampleur du potentiel zéta joue un rôle important dans la théorie des colloïdes, car il donne une indication du potentiel de stabilité d'un système colloïdal. Si toutes les particules en suspension dans un tel système présentent une valeur élevée de potentiel zéta (négative ou positive), alors celles-ci auront tendance à se repousser l'une l'autre et il n'y aura pas de rassemblement. Toutefois, si les particules ont de faibles valeurs de potentiel zéta, il n'y aura pas de force pour empêcher les particules de se rassembler et ainsi former une floculation.

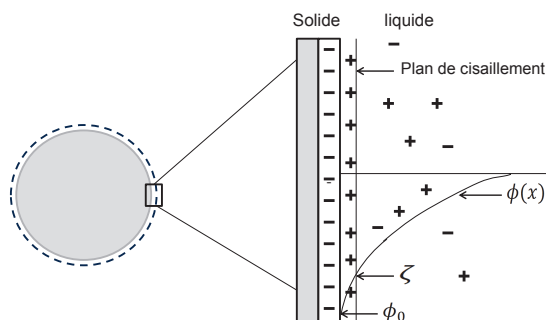


FIGURE 1.16 – Double couche électrique autour d’une particule diélectrique, zoom sur le voisinage de la surface de la particule.

1.5 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre que l’étude du comportement diélectrique des cellules biologiques est basée dans la théorie classique sur des modèles généraux qui ne prennent pas toujours en compte les aspects liés à la présence de la double couche électrique. Les effets qui découlent de cette dernière influencent l’interaction champ électrique - cellule biologique dans son microsysteme, à travers notamment les phénomènes d’électrophorèse et d’électro-osmose. Une approche quantitative prenant en compte ces effets électrocinétiques sera appliquée au cas précis de l’électrorotation dans le chapitre 4.

Bibliographie

- [Amin 2008] Mohammad Amin, Pradip Peter Dey et Hassan Badkoobehi. *A complete electrical equivalent circuit model for biological cell*. In Proceedings of the 7th WSEAS International Conference on Applied Computer and Applied Computational Science, ACACOS’08, pages 343–348, Stevens Point, Wisconsin, USA, 2008. World Scientific and Engineering Academy and Society (WSEAS). (Cité en page 19.)
- [Arnold 1982] W. M. Arnold et U. Zimmermann. *Rotating-field-induced rotation and measurement of the membrane capacitance of single mesophyll cells of Avena sativa*. Z. Naturforsch., vol. 37c, pages 908–915, 1982. (Cité en pages 18 et 22.)
- [Arnold 1988] W.M Arnold et U. Zimmermann. *Electro-rotation : development of a technique for dielectric measurements on individual cells and particles*. Journal of Electrostatics, vol. 21, pages 151–191, 1988. (Cité en page 17.)
- [Arnold 1998] W.M. Arnold. *Dielectric measurements using novel three-electrode technique*. In Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena

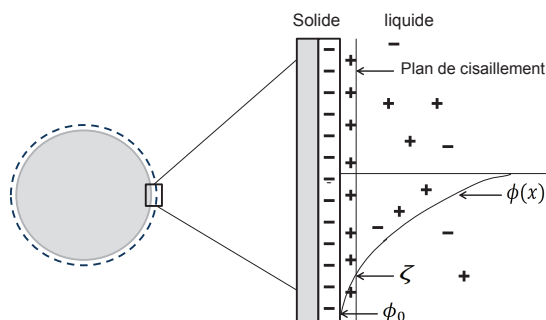


FIGURE 1.16 – Double couche électrique autour d’une particule diélectrique, zoom sur le voisinage de la surface de la particule.

1.5 Conclusion

Nous avons vu dans ce chapitre que l’étude du comportement diélectrique des cellules biologiques est basée dans la théorie classique sur des modèles généraux qui ne prennent pas toujours en compte les aspects liés à la présence de la double couche électrique. Les effets qui découlent de cette dernière influencent l’interaction champ électrique - cellule biologique dans son microsysteme, à travers notamment les phénomènes d’électrophorèse et d’électro-osmose. Une approche quantitative prenant en compte ces effets électrocinétiques sera appliquée au cas précis de l’électrorotation dans le chapitre 4.

Bibliographie

- [Amin 2008] Mohammad Amin, Pradip Peter Dey et Hassan Badkoobehi. *A complete electrical equivalent circuit model for biological cell*. In Proceedings of the 7th WSEAS International Conference on Applied Computer and Applied Computational Science, ACACOS’08, pages 343–348, Stevens Point, Wisconsin, USA, 2008. World Scientific and Engineering Academy and Society (WSEAS). (Cité en page 19.)
- [Arnold 1982] W. M. Arnold et U. Zimmermann. *Rotating-field-induced rotation and measurement of the membrane capacitance of single mesophyll cells of Avena sativa*. Z. Naturforsch., vol. 37c, pages 908–915, 1982. (Cité en pages 18 et 22.)
- [Arnold 1988] W.M Arnold et U. Zimmermann. *Electro-rotation : development of a technique for dielectric measurements on individual cells and particles*. Journal of Electrostatics, vol. 21, pages 151–191, 1988. (Cité en page 17.)
- [Arnold 1998] W.M. Arnold. *Dielectric measurements using novel three-electrode technique*. In Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena

- (CEIDP), Annual Report, volume 1, pages 356–359, 1998. (Cité en pages 16 et 17.)
- [Asami 1984] Koji Asami, Akihiko Irimajiri, Noriyuki Tetsuya Hanai Shiraishi et Kozo Utsumi. *Dielectric analysis of mitochondria isolated from rat liver I. Swollen mitoplasts as simulated by a single-shell model*. Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Biomembranes, vol. 778, no. 3, pages 559 – 569, 1984. (Cité en page 20.)
- [Asami 1996] K. Asami, T. Yonezawa, H. Wakamatsu et N. Koyanagi. *Dielectric spectroscopy of biological cells*. Bioelectrochemistry and Bioenergetics, vol. 40, no. 2, pages 141 – 145, 1996. (Cité en page 22.)
- [Asami 2002] Koji Asami. *Characterization of heterogeneous systems by dielectric spectroscopy*. Progress in Polymer Science, vol. 27, no. 8, pages 1617–1659, 2002. (Cité en page 18.)
- [Cole 1928] Kenneth S. Cole. *Electric impedance of suspensions of spheres*. J. Gen. Physiol., vol. 12, no. 1, page 29, 1928. (Cité en page 19.)
- [Cole 1942] K.S. Cole et R.M. Guttman. *Electric impedance of the egg*. Journal of general physiology, vol. 25, 1942. (Cité en page 20.)
- [Davey 1995] L.Christopher Davey et B.Douglas Kell. *The low-frequency dielectric properties of biological cells*. In Dieter Walz, Hermann Berg et Giulio Milazzo, éditeurs, Bioelectrochemistry of Cells and Tissues, volume 2 of *Bioelectrochemistry : Principles and Practice*, pages 159–207. Birkhauser Basel, 1995. (Cité en page 18.)
- [De Gasperis 1998] Giovanni De Gasperis, XiaoBo Wang, Jun Yang, F Becker Frederick et Peter R.C. Gascoyne. *Automated electrorotation : dielectric characterization of living cells by real-time motion estimation*. Measurement Science and Technology, vol. 9, no. 3, page 518, 1998. (Cité en page 20.)
- [Di Biasio 2007] A. Di Biasio et C. Cametti. *Effect of shape on the dielectric properties of biological cell suspensions*. Bioelectrochemistry, vol. 71, no. 2, pages 149–56, 2007. (Cité en page 9.)
- [Ellappan 2005] Premkumar Ellappan et Raji Sundararajan. *A simulation study of the electrical model of a biological cell*. Journal of Electrostatics, vol. 63, no. 3-4, pages 297 – 307, 2005. (Cité en page 19.)
- [Ermolina 2004] Irina Ermolina et Hywel Morgan. *The electrokinetic properties of latex particles :comparison of electrophoresis and dielectrophoresis*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 285, pages 419 –428, December 2004. (Cité en page 9.)
- [Ervenka 2009] Petr Ervenka, Michal Přibyl et Dalimil Šnita. *Numerical study on AC electroosmosis in microfluidic channels*. Microelectron. Eng., vol. 86, no. 4-6, pages 1333–1336, Avril 2009. (Cité en page 27.)
- [Fricke 1953] Hugo Fricke. *The Maxwell-Wagner Dispersion in a Suspension of Ellipsoids*. The Journal of Physical Chemistry, vol. 57, no. 9, pages 934–937, 1953. (Cité en page 10.)

- [Gagnon 2011] Zachary R. Gagnon. *Cellular dielectrophoresis : Applications to the characterization, manipulation, separation and patterning of cells*. ELEC-TROPHORESIS, vol. 32, no. 18, pages 2466–2487, 2011. (Cité en page 20.)
- [Gao 2003] Lei Gao, J. Huang et K. Yu. *Theory of ac electrokinetic behavior of spheroidal cell suspensions with an intrinsic dispersion*. Physical Review E, vol. 67, no. 2, pages 1–10, Février 2003. (Cité en pages 10 et 63.)
- [Gascoyne 2002] Peter R. C. Gascoyne et Jody Vykoukal. *Particle separation by dielectrophoresis*. Electrophoresis, vol. 23, pages 1973–1983, 2002. (Cité en page 12.)
- [Gimsa 1998] J. Gimsa et D. Wachner. *A unified resistor-capacitor model for impedance, dielectrophoresis, electrorotation, and induced transmembrane potential*. Biophys J, vol. 75, no. 2, pages 1107–16, 1998. (Cité en page 11.)
- [Gimsa 2001] Jan Gimsa. *A comprehensive approach to electro-orientation, electro-deformation, dielectrophoresis, and electrorotation of ellipsoidal particles and biological cells*. Bioelectrochemistry, vol. 54, no. 1, pages 23 – 31, 2001. (Cité en page 22.)
- [Green 1997] N G Green et H Morgan. *Dielectrophoretic investigations of sub-micrometre latex spheres*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 30, no. 18, page 2626, 1997. (Cité en pages 12 et 21.)
- [Halzel 1999] Ralph Halzel. *Non-invasive determination of bacterial single cell properties by electrorotation*. Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Molecular Cell Research, vol. 1450, no. 1, pages 53 – 60, 1999. (Cité en page 20.)
- [Han 2013] Song-I Han, Young-Don Joo et Ki-Ho Han. *An electrorotation technique for measuring the dielectric properties of cells with simultaneous use of negative quadrupolar dielectrophoresis and electrorotation*. Analyst, vol. 138, pages 1529–1537, 2013. (Cité en page 20.)
- [Hanai 1975] T. Hanai, N. Koizumi et A. Irimajiri. *A method for determining the dielectric constant and the conductivity of membrane-bounded particles of biological relevance*. Biophysics of structure and mechanism, vol. 1, pages 285–294, 1975. (Cité en pages 20 et 21.)
- [Holzapfel 1982] C. Holzapfel, J. Vienken et U. Zimmermann. *Rotation of cells in an alternating electric field theory and experimental proof*. The Journal of Membrane Biology, vol. 67, pages 13–26, 1982. (Cité en pages 16 et 99.)
- [Holzel 1997] R. Holzel. *Electrorotation of single yeast cells at frequencies between 100 Hz and 1.6 GHz*. Biophysical Journal, vol. 73, no. 2, pages 1103 – 1109, 1997. (Cité en page 18.)
- [Huang 1992] Y Huang, R Holzel, R Pethig et Xiao-B Wang. *Differences in the AC electrodynamics of viable and non-viable yeast cells determined through combined dielectrophoresis and electrorotation studies*. Physics in Medicine and Biology, vol. 37, no. 7, page 1499, 1992. (Cité en pages 18 et 58.)

- [Hughes 1998] Michael Pycraft Hughes. *Computer-aided analysis of conditions for optimizing practical electrorotation*. Physics in Medicine and Biology, vol. 43, no. 12, page 3639, 1998. (Cité en pages 17 et 85.)
- [Hughes 1999] Michael P Hughes, Steffen Archer et Hywel Morgan. *Mapping the electrorotational torque in planar microelectrodes*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 32, no. 13, page 1548, 1999. (Cité en pages 21 et 85.)
- [Hughes 2003] M.P. Hughes. Nanoelectromechanics in engineering and biology. Nano- and microscience, engineering, technology, and medicine series. CRC Press, 2003. (Cité en pages 20, 59 et 103.)
- [Jones 1990] T B. Jones. *Dielectrophoretic spectra of single cells determined by feedback-controlled levitation*. Biophysical journal, vol. 57, pages 173–82, 1990. (Cité en page 15.)
- [Jones 1994] T.B. Jones et Masao Washizu. *Equilibria and dynamics of DEP-levitated particles : multipolar theory*. Journal of Electrostatics, vol. 33, no. 2, pages 199 – 212, 1994. (Cité en pages 15 et 63.)
- [Jones 1995] T. B. Jones. Electromechanics of particles. Cambridge Univ Press, 1995. (Cité en pages 9, 14, 15, 16, 18, 20, 21, 36, 45, 46, 50, 56, 58, 63, 64 et 81.)
- [Jones 2003] Thomas B Jones. *Basic theory of dielectrophoresis and electrorotation*. IEEE engineering in medicine and biology magazine : the quarterly magazine of the Engineering in Medicine & Biology Society, vol. 22, no. 6, pages 33–42, 2003. (Cité en pages 9, 10, 12, 19, 22, 44, 50 et 65.)
- [Kiesel 2006] M. Kiesel, R. Reuss, J. Endter, D. Zimmermann, H. Zimmermann, R. Shirakashi, E. Bamberg, U. Zimmermann et V.L. Sukhorukov. *Swelling-Activated Pathways in Human T-Lymphocytes Studied by Cell Volumetry and Electrorotation*. Biophysical Journal, vol. 90, no. 12, pages 4720 – 4729, 2006. (Cité en page 18.)
- [Korohoda 2008] W. Korohoda et A. Wilk. *Cell electrophoresis : a method for cell separation and research into cell surface properties*. Cellular & Molecular Biology Letters, vol. 13, pages 312–326, 2008. (Cité en page 23.)
- [Lastochkin 2004] D. Lastochkin, R. Zhou, P. Wang, Y. Ben et H.C Chang. *Electrokinetic micropump and micromixer design based on AC Faradaic polarization*. J. Appl. Phys, vol. 96, (3), pages 1730–1733, 2004. (Cité en page 27.)
- [Lyklema 1995] J. Lyklema. Fundamentals of interface and colloid science : Solid-liquid interfaces. vol2. Academic Press, 1995. (Cité en pages 24, 93, 95 et 105.)
- [Morgan 2003] H. Morgan et N.G. Green. Ac electrokinetics : colloids and nanoparticles. Numeéro 2 de Microtechnologies and microsystems series. Research Studies Press, Philadelphia, PA, USA, 2003. (Cité en pages 8, 13, 14 et 63.)
- [Morgan 2007] H. Morgan, T. Sun, D. Holmes, S. Gawad et N.G. Green. *Single cell dielectric spectroscopy*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 40, no. 1, page 61, 2007. (Cité en pages 19 et 20.)

- [Pethig 1979] R. Pethig. Dielectric and electronic properties of biological materials. Wiley, 1979. (Cit  en page 11.)
- [Pethig 1987] R. Pethig et D.B. Kell. *The passive electrical properties of biological systems : their significance in physiology, biophysics and biotechnology*. Physics in Medicine and Biology, vol. 32, no. 8, page 933, 1987. (Cit  en page 18.)
- [Pethig 1992] R Pethig, Ying Huang, Xiao bo Wang et J P H Burt. *Positive and negative dielectrophoretic collection of colloidal particles using interdigitated castellated microelectrodes*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 25, no. 5, page 881, 1992. (Cit  en page 20.)
- [Pohl 1978] H. A. Pohl. Dielectrophoresis : the Behavior of Neutral Matter in Nonuniform Electric Fields. Cambridge University Press, 1978. (Cit  en pages 8, 20, 36 et 65.)
- [Ronald 2010] Pethig Ronald. *Dielectrophoresis : Status of the theory, technology, and applications*. Biomicrofluidics, vol. 4, no. 2010, page 022811, 2010. (Cit  en pages 8, 18, 22, 50 et 63.)
- [Schnelle 1999] T. Schnelle, T. Muller et G. Fuhr. *Dielectric single particle spectroscopy for measurement of dispersion*. Medical & Biological Engineering & Computing, vol. 37, pages 264–271, 1999. (Cit  en page 20.)
- [Schwan 1983] H.P. Schwan. *Electrical properties of blood and its constituents : Alternating current spectroscopy*. Blut, vol. 46, pages 185–197, 1983. (Cit  en page 10.)
- [Stratton 1941] Julius Adams Stratton. Electromagnetic theory. McGraw-Hill, New York, 1st ed.  dition, 1941. (Cit  en pages 12, 36, 43, 44, 48, 63, 66, 79 et 127.)
- [Sukhorukov 2001] V.L. Sukhorukov, G. Meedt, M. Kurschner et U. Zimmermann. *A single-shell model for biological cells extended to account for the dielectric anisotropy of the plasma membrane*. Journal of Electrostatics, vol. 50, no. 3, pages 191–204, 2001. (Cit  en page 22.)
- [Thoen 1989] J. Thoen, R. Kindt, W. van Dael, M. Merabet et T. K. Bose. *Low-frequency dielectric dispersion and electric conductivity near the consolute point in some binary liquid mixtures*. Physica A : Statistical and Theoretical Physics, vol. 156, no. 1, pages 92–113, Mars 1989. (Cit  en page 24.)
- [Valero 2010] A. Valero, T. Braschler et P. Renaud. *A unified approach to dielectric single cell analysis : impedance and dielectrophoretic force spectroscopy*. Lab Chip, vol. 10, no. 17, pages 2216–25, 2010. (Cit  en page 19.)
- [Voyer 2010] Damien Voyer, Marie Fr n a-Robin, Franois Buret et Laurent Nicolas. *Improvements in the extraction of cell electric properties from their electro-rotation spectrum*. Bioelectrochemistry, vol. 79, no. 1, pages 25 – 30, 2010. (Cit  en page 20.)
- [Wang 1992] Xiao-Bo Wang, R Pethig et T B Jones. *Relationship of dielectrophoretic and electrorotational behaviour exhibited by polarized particles*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 25, no. 6, page 905, 1992. (Cit  en page 18.)

- [Wu 2005] Jie Wu, Yuxing Ben, David Battigelli et Hsueh-Chia Chang. *Long-Range AC Electroosmotic Trapping and Detection of Bioparticles*. Industrial & Engineering Chemistry Research, vol. 44, no. 8, pages 2815–2822, 2005. (Cité en page 27.)
- [Yang 1999] J. Yang, Y. Huang, X. Wang, X. B. Wang, F. Becker et P. R. C. Gascoyne. *Dielectric Properties of Human Leukocyte Subpopulations Determined by Electrorotation as a Cell Separation Criterion*. Biophys. J., vol. 76, no. 6, pages 3307–3314, 1999. (Cité en page 18.)
- [Zhang 1983] H.Z. Zhang, K. Sekine, T. Hanai et N. Koizumi. *Dielectric observations on polystyrene microcapsules and the theoretical analysis with reference to interfacial polarization*. Colloid and Polymer Science, vol. 261, pages 381–389, 1983. (Cité en page 21.)
- [Zhu 2009] Junjie Zhu et Xiangchun Xuan. *Particle electrophoresis and dielectrophoresis in curved microchannels*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 340, no. 2, pages 285 – 290, 2009. (Cité en page 9.)
- [Zimmermann 1996] Ulrich Zimmermann et Garry A. Neil. *Electromanipulation of Cells*. CRC-Press, 1 édition, Avril 1996. (Cité en pages 12, 20, 97 et 132.)

Polarisation d'une particule diélectrique soumise à un champ électrique statique

Sommaire

2.1 Développement multipolaire	36
2.1.1 Equation de Laplace	36
2.1.2 Harmoniques sphériques	37
2.1.3 Développement multipolaire du potentiel dû à une distribution de charges	41
2.1.4 Représentation physique des multipôles	44
2.2 Les moments effectifs	48
2.2.1 Développement en harmoniques sphériques	49
2.2.2 Détermination numérique des moments effectifs	50
2.2.3 Champ uniforme	51
2.2.4 Champ non uniforme	56
2.3 Modèle multicouche	58
2.3.1 Modèle multicouche sphérique	58
2.4 Conclusion	60
Bibliographie	60

Dans ce chapitre, nous nous placerons dans le cadre général d'une particule diélectrique homogène soumise à un champ électrique, et nous étudierons les modèles décrivant la polarisation de cette particule, en fonction de ses données spécifiques, de son milieu extérieur et du champ appliqué. Nous présenterons dans un premier temps des éléments de la théorie générale du potentiel, avec son formalisme de développement multipolaire, avant de faire le lien avec les entités physiques qui nous intéressent dans le cadre de notre étude, à savoir les moments effectifs. L'objectif double de cette étude est, d'une part, d'adopter des modèles représentatifs du phénomène d'interaction champ-particule et, d'autre part, de permettre le calcul des effets électromécanique mis en jeu dans cette interaction (Chapitre 3). Dans une troisième partie, nous aborderons le cas de particules ayant une structure multicouche, et nous présenterons une approche permettant de se ramener au cas simple par homogénéisation.

2.1 Développement multipolaire

L'étude électrostatique de l'interaction entre un champ électrique appliqué par un système d'électrodes donné et une particule diélectrique permet de construire des modèles facilitant la description quantitative et qualitative du comportement électrique de la particule en question [Pohl 1978, Sauer 1985, Jones 1995]. En particulier, le potentiel induit par cette particule en présence du champ appliqué traduit sa polarisation et permet ainsi de construire un modèle multipolaire exploitable d'une part pour la quantification des grandeurs électromécanique (force, couple,...) et d'autre part pour la caractérisation électrique de la particule dans son milieu de suspension.

Avec l'hypothèse qu'il n'y a pas de charge libre dans l'espace, le potentiel électrostatique est gouverné par l'équation de Laplace, qui fait l'objet du premier paragraphe de cette partie.

2.1.1 Equation de Laplace

Considérons l'équation de Laplace pour le potentiel U [Stratton 1941]

$$\Delta U = 0. \quad (2.1)$$

En coordonnées cartésiennes cette équation s'écrit :

$$\frac{\partial^2 U}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 U}{\partial z^2} = 0. \quad (2.2)$$

En coordonnées sphériques (r, θ, φ) :

$$x = r \sin \theta \cos \varphi, \quad y = r \sin \theta \sin \varphi, \quad z = r \cos \theta, \quad (2.3)$$

l'équation (2.2) s'écrit alors :

$$\frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial r} \left(r^2 \frac{\partial U}{\partial r} \right) + \frac{1}{r^2} \nabla_{(\theta, \varphi)}^2 U = 0 \quad (2.4)$$

où $\nabla_{(\theta, \varphi)}^2$ est l'opérateur bidimensionnel de Laplace défini sur la surface de la sphère unité par :

$$\nabla_{(\theta, \varphi)}^2 \equiv \frac{1}{\sin \theta} \frac{\partial}{\partial \theta} \left(\sin \theta \frac{\partial U}{\partial \theta} \right) + \frac{1}{\sin^2 \theta} \frac{\partial^2 U}{\partial \varphi^2}, \quad (2.5)$$

On cherche U solution de (2.4) comme un produit de fonctions à variables séparées sous la forme :

$$U(r, \theta, \varphi) = \frac{1}{r} R(r) \mathcal{Y}(\theta, \varphi) \quad (2.6)$$

et (2.4) devient (sous l'hypothèse $U \neq 0$) :

$$\frac{r^2}{R} \frac{d^2 R}{dr^2} + \frac{1}{\mathcal{Y}} \nabla_{(\theta, \varphi)}^2 \mathcal{Y} = 0 \quad (2.7)$$

Le second terme dans cette équation dépend uniquement de θ et φ alors que le premier terme dépend uniquement de r . Cela permet de déduire que le second terme est égal à une constante λ pour tout (r, θ, φ) et on obtient :

$$\nabla_{(\theta, \varphi)}^2 \mathcal{Y} = -\lambda \mathcal{Y} \quad (2.8)$$

$$\frac{d^2 R}{dr^2} = \frac{\lambda}{r^2} R. \quad (2.9)$$

Pour étudier le problème aux valeurs propres (2.8)-(2.9), on suppose une seconde séparation de variables pour $\mathcal{Y}$,

$$\mathcal{Y}(\theta, \varphi) = \Theta(\theta)\Phi(\varphi). \quad (2.10)$$

On obtient alors les deux équations :

$$\frac{d^2 \Phi}{d\varphi^2} + m^2 \Phi = 0, \quad (2.11)$$

$$\sin \theta \frac{d}{d\theta} \left(\sin \theta \frac{d\Theta}{d\theta} \right) + (\lambda \sin^2 \theta - m^2) \Theta = 0. \quad (2.12)$$

En introduisant le changement de variables $s = \cos \theta$ et v tel que $v \circ \cos = \Theta$, l'équation (2.12) s'écrit :

$$\frac{d}{ds} \left((1-s^2) \frac{dv}{ds} \right) + \left(\lambda - \frac{m^2}{1-s^2} \right) v = 0 \quad \forall s \in [-1, 1]. \quad (2.13)$$

Cette équation est appelée l'équation de Legendre associée, et ses solutions sont discutées en annexe A. Pour le cas $m = 0$ qui correspond à une solution indépendante de la variable φ , on obtient l'équation de Legendre associée ayant une solution polynômiale sous forme d'une série qui converge pour les valeurs de $\lambda = n(n+1)$ avec n entier naturel, ce sont les polynômes de Legendre. Le cas général donne lieu aux fonctions de Legendre associées (annexe A).

2.1.2 Harmoniques sphériques

La construction de solutions pour l'équation de Laplace par séparation de variables a permis d'introduire les polynômes de Legendre et les fonctions de Legendre associées. En regardant les fonctions angulaires obtenues, on voit que les fonctions solutions de l'équation :

$$-\nabla_{(\theta, \varphi)} \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) = n(n+1) \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) \quad (2.14)$$

sont caractérisées par deux entiers n et m :

$$\mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) = \sqrt{\frac{2n+1}{4\pi}} \sqrt{\frac{(n-m)!}{(n+m)!}} P_n^m(\cos \theta) e^{im\varphi} \quad (2.15)$$

avec

$$n \geq 0 \quad \text{et} \quad -n \leq m \leq n .$$

Ce sont les harmoniques sphériques (voir une représentation graphique dans fig. 2.1).

Les développements précédents relatifs à la construction de solutions de l'équation de Laplace par séparation de variables permettent d'écrire la solution la plus générale de cette équation en utilisant les harmoniques sphériques :

$$U(r, \theta, \varphi) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n (A_{n,m} r^n + B_{n,m} r^{-n-1}) \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) \quad (2.16)$$

qu'on peut écrire sous la forme :

$$U(r, \theta, \varphi) = U_1(r, \theta, \varphi) + U_2(r, \theta, \varphi) \quad (2.17)$$

avec

$$U_1(r, \theta, \varphi) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n A_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) \quad (2.18)$$

et

$$U_2(r, \theta, \varphi) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n B_{n,m} r^{-n-1} \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi). \quad (2.19)$$

Il sera utile dans la suite d'écrire les fonctions complexes $\mathcal{Y}_n^m$ en séparant les quantités réelles et imaginaires :

$$\mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) = Y_n^m(\theta, \varphi) + i\tilde{Y}_n^m(\theta, \varphi) \quad (2.20)$$

avec

$$Y_n^m(\theta, \varphi) = \mathcal{N}_n^m P_n(\cos \theta) \cos m\varphi \quad \text{et} \quad \tilde{Y}_n^m(\theta, \varphi) = \mathcal{N}_n^m P_n(\cos \theta) \sin m\varphi \quad (2.21)$$

où les P_n sont les polynômes de Legendre, et $\mathcal{N}_n^m$, (pour (m, n) fixé), est une constante de normalisation.

D'autres propriétés de ces fonctions qui seront utiles pour la suite sont :

Othogonalité

$$\begin{aligned} \langle Y_n^m, Y_l^k \rangle &= \int_{S_0} Y_n^m Y_l^k dS = 0 & (m, n) \neq (k, l), \\ \langle Y_n^m, \tilde{Y}_l^k \rangle &= \int_{S_0} Y_n^m \tilde{Y}_l^k dS = 0 & \text{pour tout } (m, n), (k, l) \\ \langle \tilde{Y}_n^m, \tilde{Y}_l^k \rangle &= \int_{S_0} \tilde{Y}_n^m \tilde{Y}_l^k dS = 0 & (m, n) \neq (k, l) \end{aligned} \quad (2.22)$$

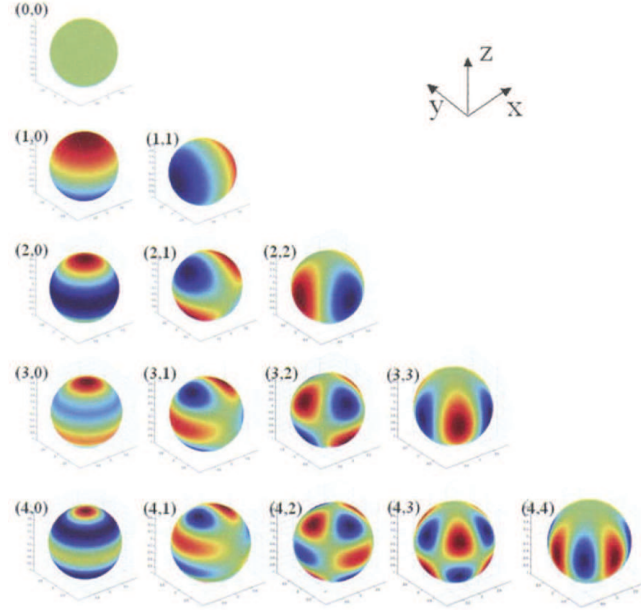


FIGURE 2.1 – Harmoniques sphériques

où S_0 est la sphère unité.

La propriété d'orthogonalité s'écrit aussi :

$$\int \mathcal{Y}_n^m \mathcal{Y}_l^{k*} dS = \delta_{nl} \delta_{mk}$$

où la notation z^* désigne le conjugué complexe de z , et δ le symbole de Kronecker¹

Parité

$$\mathcal{Y}_n^{-m}(\theta, \varphi) = (-1)^m \mathcal{Y}_n^{m*}(\theta, \varphi) \quad (2.24)$$

Grâce à cette propriété, l'utilisation des harmoniques sphériques réelles s'avère souvent suffisante pour représenter les situations d'étude de polarisation électrostatique étudiées dans la suite.

Les expressions explicites des premières harmoniques sphériques réelles Y_n^m en coordonnées cartésiennes et sphériques sont données dans les tableaux (Tab. 2.1.2) et (Tab. 2.1.2) respectivement.

1.

$$\delta_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{si } i = j \\ 0 & \text{si } i \neq j \end{cases} \quad (2.23)$$

avec i, j entiers naturels.

$\begin{array}{c} \backslash \\ m \end{array} \begin{array}{c} n \end{array}$	0	1	2	3
0	1	$\cos \theta$	$\frac{1}{2}(3 \cos^2 \theta - 1)$	$\frac{1}{2} \cos \theta (5 \cos^2 \theta - 3)$
1		$\sin \theta \cos \theta$	$\frac{\sqrt{3}}{2} \sin 2\theta \cos \varphi$	$\frac{\sqrt{6}}{4} (5 \cos^2 \theta - 1) \cos \varphi$
2			$\frac{\sqrt{3}}{2} \sin^2 \theta \cos 2\varphi$	$\frac{\sqrt{15}}{2} \sin^2 \theta \cos^2 \theta \cos 2\varphi$
3				$\frac{\sqrt{10}}{4} \sin^3 \theta \cos 3\varphi$

$\begin{array}{c} \backslash \\ m \end{array} \begin{array}{c} n \end{array}$	4	5
0	$\frac{35}{8} \cos^4 \theta - \frac{15}{4} \sin^2 \theta + \frac{3}{8}$	$\frac{1}{8} \cos \theta (63 \cos^4 \theta - 70 \cos^2 \theta + 15)$
1	$\frac{\sqrt{10}}{4} \sin^2 \theta \cos \theta (7 \cos^2 \theta - 3) \cos \varphi$	$\frac{\sqrt{15}}{8} \sin \theta (21 \cos^4 \theta - 14 \cos^2 \theta + 1) \cos \varphi$
2	$\frac{\sqrt{5}}{4} \sin^2 \theta (7 \cos^2 \theta - 1) \cos 2\varphi$	$\frac{\sqrt{105}}{4} \sin^2 \theta \cos \theta (3 \cos^2 \theta - 1) \cos 2\varphi$
3	$\frac{\sqrt{70}}{4} \sin^3 \theta \cos \theta \cos 3\varphi$	$\frac{\sqrt{70}}{12} \sin^3 \theta (9 \cos^2 \theta - 1) \cos 3\varphi$
4	$\frac{\sqrt{35}}{8} \sin^4 \theta \cos 4\varphi$	$\frac{3\sqrt{35}}{98} \sin^4 \theta \cos \theta \cos 4\varphi$
5		$\frac{3\sqrt{14}}{112} \sin^5 \theta \cos 5\varphi$

TABLE 2.1 – Expressions des premières harmoniques sphériques réelles en coordonnées sphériques.

n	0	1	2	3
0	1	z	$\frac{1}{2}(3z^2 - 1)$	$\frac{1}{2}z(5z^2 - 3)$
1		x	$\sqrt{3}xz$	$\frac{\sqrt{6}}{4}x(5z^2 - 1)$
2			$\frac{\sqrt{3}}{2}(x^2 - y^2)$	$\frac{\sqrt{15}}{2}z(x^2 - y^2)$
3				$\frac{\sqrt{10}}{4}x(x^2 - 3y^2)$

$\begin{array}{c} \backslash \\ m \end{array} \begin{array}{c} n \end{array}$	4	5
0	$\frac{1}{8}(35z^4 - 30z^2 + 3)$	$\frac{1}{8}z(63z^4 - 70z^2 + 15)$
1	$\frac{\sqrt{10}}{4}xz(7z^2 - 3)$	$\frac{\sqrt{15}}{8}x(4z^4 - 14z^2 + 1)$
2	$\frac{\sqrt{5}}{4}(x^2 - y^2)(7z^2 - 1)$	$\frac{\sqrt{105}}{4}z(x^2 - y^2)(3z^2 - 1)$
3	$\frac{\sqrt{70}}{4}zx(x^2 - 3y^2)$	$\frac{\sqrt{70}}{12}(9z^2 - 1)x(x^2 - 3y^2)$
4	$\frac{\sqrt{35}}{8}(x^4 - 6x^2y + y^4)$	$3\frac{\sqrt{35}}{98}z(x^4 - 6x^2y + y^4)$
5		$3\frac{\sqrt{14}}{112}x(x^4 - 10x^2y^2 + 5y^4)$

TABLE 2.2 – Expressions des premières harmoniques sphériques réelles en coordonnées cartésiennes

2.1.3 Développement multipolaire du potentiel dû à une distribution de charges

Soit ρ une distribution de charge confinée dans une région définies par $r < R$, ou R est le rayon de la sphère délimitant cette région et r la distance au centre de cette sphère. Le potentiel U qui résulte de cette distribution de charge est donné par :

$$U(\mathbf{r}) = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \int \frac{\rho(\mathbf{r}')}{\|\mathbf{r} - \mathbf{r}'\|} d\mathbf{r}'. \quad (2.25)$$

Considérons la fonction de Green $G : (\mathbf{r}, \mathbf{r}') \mapsto \frac{1}{\|\mathbf{r} - \mathbf{r}'\|}$,

Soit $\mathbf{r} : (r, \theta, \varphi)$ et $\mathbf{r}' : (r', \theta', \varphi')$ où $r \equiv \|\mathbf{r}\|$, $r' \equiv \|\mathbf{r}'\|$. Selon que $r > r'$ ou $r < r'$ le développement en harmoniques sphériques de cette fonction est :

$$r > r' : \frac{1}{\|\mathbf{r} - \mathbf{r}'\|} = \sum_{n \geq 0} \sum_{m=-n}^n \frac{4\pi}{2n+1} \frac{r'^n}{r^{n+1}} \mathcal{Y}_n^{*m}(\theta', \varphi') \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi), \quad (2.26)$$

$$r < r' : \frac{1}{\|\mathbf{r} - \mathbf{r}'\|} = \sum_{n \geq 0} \sum_{m=-n}^n \frac{4\pi}{2n+1} \frac{r^n}{r'^{n+1}} \mathcal{Y}_n^{*m}(\theta', \varphi') \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi), \quad (2.27)$$

qu'on peut écrire en adoptant la notation du Jackson [Jackson 1998] sous la forme :

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = 4\pi \sum_{n \geq 0} \sum_{m=-n}^n \frac{1}{2n+1} \frac{r_{<}^n}{r_{>}^{n+1}} \mathcal{Y}_n^{*m}(\theta', \varphi') \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi). \quad (2.28)$$

avec $r_{<} = r'$ et $r_{>} = r$ d'où le développement de U (pour $r > R$) :

$$\begin{aligned} U(\mathbf{r}) &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \frac{4\pi}{2n+1} \left[\int \mathcal{Y}_n^{*m}(\theta', \varphi') (r')^n \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \right] \frac{\mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi)}{r^{n+1}} \\ &= \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \frac{4\pi}{2n+1} q_{n,m} \frac{\mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi)}{r^{n+1}}, \end{aligned} \quad (2.29)$$

où

$$q_{n,m} = \int \mathcal{Y}_n^{*m}(\theta', \varphi') (r')^n \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \quad (2.30)$$

Les coefficients donnés par (2.30) pour différentes valeurs de m et n constituent un tenseur de rang 2, c'est le tenseur de polarisation sphérique [Jackson 1998].

Tenseur de polarisation cartésien

L'expression du tenseur de polarisation en coordonnées cartésiennes permet de faire plus facilement une représentation physique des multipôles selon un formalisme donné (voir par exemple celui proposé par Jones et Washizu, emprunté plus tard). L'écriture cartésienne associée au développement en harmonique sphérique (2.16) peut être établie grâce au développement de Taylor en dimension 3 appliquée à la

fonction $f : \mathbf{r} \mapsto \frac{1}{r}$ au voisinage de $\mathbf{r}'$. En particulier on a pour la fonction de Green G le développement² :

$$G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{1}{r} - x'_i \partial_i \frac{1}{r} + \frac{1}{2!} x'_i x'_j \partial_i \partial_j \frac{1}{r} - \frac{1}{3!} x'_i x'_j x'_k \partial_i \partial_j \partial_k \frac{1}{r} + \dots \quad (2.31)$$

Or, puisque $r^2 = x_i x_i$, il s'ensuit que $\partial_i r^2 = 2r$, $\partial_i r = 2x_i$, et donc $\partial_i r = \frac{x_i}{r}$. En ayant supposé que $r \neq 0$ on a donc :

$$\partial_i \partial_i \frac{1}{r} = 0, \quad (2.32)$$

Une conséquence de cela est que toutes les dérivées $\partial_i \partial_i \frac{1}{r}$, $\partial_i \partial_j \partial_k \frac{1}{r}$, $\partial_i \partial_j \partial_k \partial_l \frac{1}{r}$, ..., sont de trace nulle pour toute paire d'indices : $\delta_{ij} \partial_i \partial_j \frac{1}{r} = 0$, $\delta_{ij} \partial_i \partial_j \partial_k \frac{1}{r} = 0$, etc.

On peut utiliser cette propriété pour remplacer les quantités $x'_i x'_j$, $x'_i x'_j x'_k$, ... qui multiplient les dérivées dans (2.31) par les quantités à trace nulle $\left(x'_i x'_j - \frac{1}{3} \delta_{ij} r'^2\right)$, $\left(x'_i x'_j x'_k - \frac{1}{5} [x'_i \delta_{jk} + x'_j \delta_{ik} + x'_k \delta_{ij}] r'^2\right)$, ...

Il s'en suit en utilisant (2.25) et (2.31) que :

$$U(\mathbf{r}) = \frac{1}{r} \int \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' - \left(\partial_i \frac{1}{r}\right) \int x'_i \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' + \frac{1}{2} \left(\partial_i \partial_j \frac{1}{r}\right) \int (x'_i x'_j - \frac{1}{3} \delta_{ij} r'^2) \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' - \frac{1}{6} \left(\partial_i \partial_j \partial_k \frac{1}{r}\right) \int \left(x'_i x'_j x'_k - \frac{1}{5} [x'_i \delta_{jk} + x'_j \delta_{ik} + x'_k \delta_{ij}] r'^2\right) \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' + \dots \quad (2.33)$$

L'expression de U peut être alors ré-écrite comme :

$$U(\mathbf{r}) = \frac{Q}{r} - p_i \partial_i \frac{1}{r} + \frac{1}{3 \times 2!} Q_{ij} \partial_i \partial_j \frac{1}{r} - \frac{1}{5 \times 3!} Q_{ijk} \partial_i \partial_j \partial_k \frac{1}{r} + \dots \quad (2.34)$$

En introduisant le vecteur unitaire $\mathbf{n}$ avec $n_i \equiv \frac{x_i}{r}$, le développement (2.34) s'écrit sous la forme

$$U(\mathbf{r}) = \frac{Q}{r} + \frac{\mathbf{p} \cdot \mathbf{n}}{r^2} + \frac{1}{2!} \frac{Q_{ij} n_i n_j}{r^3} + \frac{1}{3!} \frac{Q_{ijk} n_i n_j n_k}{r^4} + \dots \quad (2.35)$$

où

$$\begin{aligned} Q &= \int \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \\ p_i &= \int x'_i \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}' \\ Q_{ij} &= \int (3x'_i x'_j - \delta_{ij} r'^2) \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \\ Q_{ijk} &= \int (5x'_i x'_j x'_k - [x'_i \delta_{jk} + x'_j \delta_{ik} + x'_k \delta_{ij}] r'^2) \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \end{aligned} \quad (2.36)$$

2. En utilisant la convention de sommations d'Einstein.

et ainsi de suite. La quantité Q est la charge totale du système, p_i le moment dipolaire, Q_{ij} le moment quadrupolaire, et les termes suivants sont les moments d'ordres supérieurs. Notons que l'expression de p_i et de Q_{ij} sont cohérentes avec celles proposées par Stratton [Stratton 1941]. Deux remarques peuvent être faites à ce niveau, la première est que, par construction, tous les moments multipolaires avec deux indices ou plus sont symétriques et à trace nulle pour tous les indices [Raab 2005], et la deuxième est que les termes du développement multipolaire (2.35) évoluent avec une puissance de l'ordre de $1/r$. Notons que la charge Q est un scalaire, alors que le moment dipolaire p_i est un vecteur à trois composantes. Le moment quadrupolaire Q_{ij} est un tenseur symétrique d'ordre 2 en dimension trois, ce qui devrait à priori lui associer $3 \times 4/2 = 6$ composantes indépendantes. Cependant le fait qu'il est de trace nulle ($Q_{ii}=0$) implique que le nombre de ses composantes indépendantes se réduit à 5. Le moment octopolaire Q_{ijk} est un tenseur symétrique à trois indices, ce qui signifie généralement qu'il a $3 \times 4 \times 5/3! = 10$ composantes indépendantes. Mais avec la condition de trace nulle, $Q_{iij} = 0$, qui se traduit par 3 conditions, il ne présente que $10 - 3 = 7$ composantes indépendantes. De la même façon, on peut montrer que le moment d'ordre 2^n ,

$$Q_{i_1 i_2 \dots i_n} = (2n + 1) \int (x'_{i_1} x'_{i_2} \dots x'_{i_n} - \text{traces}) \rho(\mathbf{r}') d\mathbf{r}', \quad n \geq 1, \quad (2.37)$$

a $(2n+1)$ composantes.

Relation entre moments sphériques et moments cartésiens

Pour chaque n il y a une relation linéaire entre les $(2n + 1)$ composantes de $q_{n,m}$ et les $(2n + 1)$ composantes des moments multipolaires Q , p_i , Q_{ijk} , etc. De même, pour chaque n , il y a une relation entre $r^{-n-1} Y_n^m$ (fig. 2.2) et l'ensemble des fonctions $\partial_{i_1 i_2 \dots i_n} r^{-1}$.

Pour les premiers ordres, ces relations linéaires permettent d'expliciter que q_{nm} pour $n = 0, 1$ et 2 , sont liées à Q , p_i et Q_{ij} par :

$$\begin{aligned} q_{00} &= \frac{1}{\sqrt{4\pi}} Q, \\ q_{11} &= -\sqrt{\frac{3}{8\pi}} (p_1 - ip_2), \quad q_{10} = \sqrt{\frac{3}{4\pi}} p_3, \\ q_{22} &= -\frac{1}{12} \sqrt{\frac{15}{2\pi}} (Q_{11} - 2iQ_{12} - Q_{22}), \quad q_{21} = -\frac{1}{3} \sqrt{\frac{15}{8\pi}} (Q_{13} - iQ_{23}), \quad q_{20} = \frac{1}{2} \sqrt{\frac{5}{4\pi}} Q_{33}. \end{aligned} \quad (2.38)$$

Les expressions de q_{nm} pour les m négatifs sont obtenus selon (2.24).

En particulier pour $n = 1$ la contribution du dipôle au potentiel U est :

$$U^{(1)} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{4\pi}{3} \frac{1}{r^2} [q_{1,-1} Y_1^{-1}(\theta, \varphi) + q_{1,0} Y_1^0(\theta, \varphi) + q_{1,1} Y_1^1(\theta, \varphi)] \quad (2.39)$$

En utilisant (2.38) on a donc bien :

$$U^{(1)} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{\mathbf{p}^{(1)} \cdot \mathbf{x}}{r^3} \quad (2.40)$$

qui est l'expression courante du potentiel dipolaire [Franklin 2005, Jones 2003].

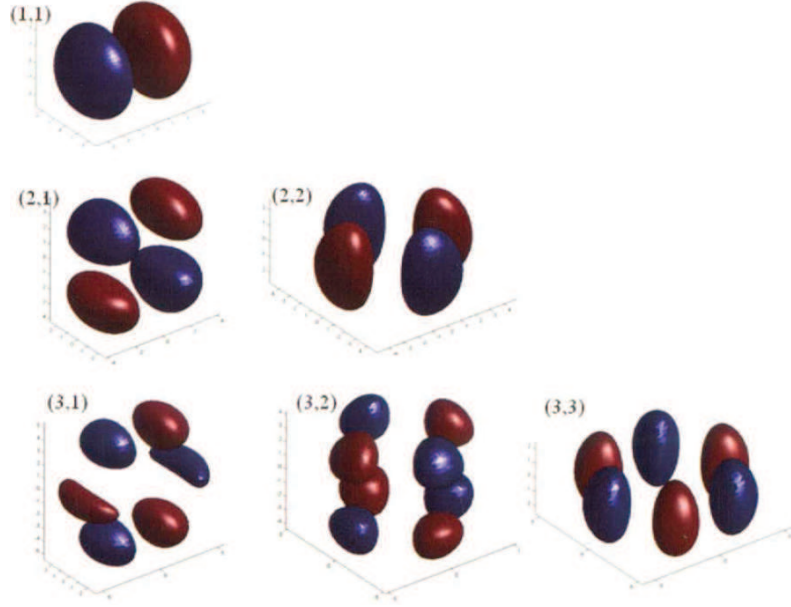


FIGURE 2.2 – Représentation des quantifiées $r^n Y_n^m$ [Gumerov 2005].

2.1.4 Représentation physique des multipôles

Le développement proposé par [Jackson 1998] permet le calcul du potentiel généré par une charge ponctuelle (loi de Coulomb) ainsi que par un ensemble de charges par le principe de superposition [Stratton 1941, Jackson 1998]. Réciproquement, les termes du développement en harmoniques sphériques (2.16) peuvent être associés à des ensembles de pôles élémentaires appelés multipôles. La construction de ces multipôles élémentaires par le biais d'une représentation physique permet de comprendre le lien entre l'écriture mathématique (développement en harmonique sphériques) et son interprétation en terme de potentiel issu d'une configuration de charges représentable physiquement (fig. 2.3). En partant de l'ordre élémentaire le plus petit, la distribution d'une charge ponctuelle q (monopôle) est représentée par une distribution de Dirac δ ,

$$\rho_0 = q\delta, \quad (2.41)$$

Le potentiel associé à ce monopôle est

$$U_0 = \frac{q}{4\pi\epsilon_1 r}. \quad (2.42)$$

Pour comprendre la construction des ordres supérieurs, considérons un dipôle composé de deux charges ponctuelles (deux monopôles) opposées valant $\pm q$ placées sur l'axe z à des positions $d/2$ et $-d/2$ respectivement [Washizu 1994] :

$$\rho_{0,0,1} = \lim_{d \rightarrow 0} [q [\delta(x, y, z - d/2) - \delta(x, y, z + d/2)]] = -p_1 \partial_z \delta(\mathbf{r}) \quad (2.43)$$

où $p_1 = \lim_{d \rightarrow 0} qd$ avec la notation du [Jones 1995] et ∂_z désignant la dérivée au sens des distributions de δ . Dans la suite toutes les dérivations selon x , y , et z de δ sont des dérivations au sens des distributions. Le potentiel associé à ce dipôle ponctuel est donné par :

$$U_{0,0,1} = \frac{q}{4\pi\epsilon_1} \lim_{d \rightarrow 0} \left[\frac{1}{r(x, y, z - d/2)} - \frac{1}{r(x, y, z + d/2)} \right] = -\frac{p_1}{\epsilon_1} \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{1}{4\pi r} \right) \quad (2.44)$$

Une construction simplifiée des ordres supérieurs consiste à former le multipôle suivant en déplaçant et en dupliquant les multipôles construits à l'ordre précédent selon la figure 2.3. Ainsi pour le quadripôle dans la direction zx on a :

$$\rho_{1,0,1} = \frac{p_2}{2} \partial_{z,x}^2 \delta \quad (2.45)$$

$$U_{1,0,1} = \frac{p_2}{8\pi\epsilon_1} \frac{\partial^2}{\partial z \partial x} \left(\frac{1}{r} \right) \quad (2.46)$$

et pour un octopôle généré dans la direction xyz (fig. 2.3) :

$$\rho_{1,1,1} = \frac{p_3}{6} \partial_{x,y,z}^3 \delta \quad (2.47)$$

$$U_{1,1,1} = -\frac{p_3}{24\pi\epsilon_1} \frac{\partial^3}{\partial x \partial y \partial z} \left(\frac{1}{r} \right). \quad (2.48)$$

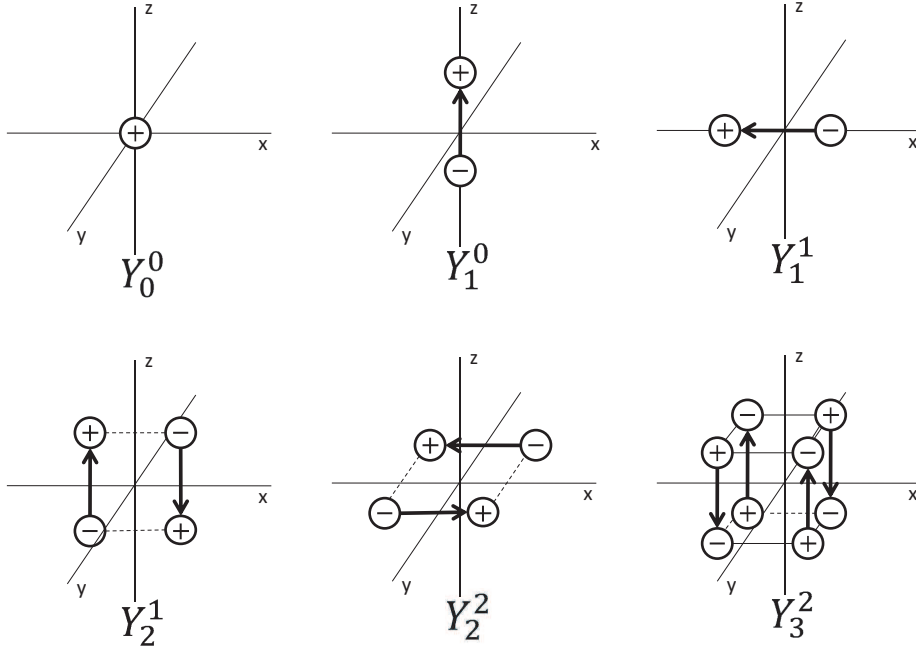


FIGURE 2.3 – Exemples de composition des premiers multipôles en référence aux harmoniques Y_n^m correspondantes

En utilisant cette méthode, le potentiel électrostatique généré par l'ensemble complet de multipôles correspondant à l'ordre n peut être obtenu en terme de dérivées partielles d'ordre i, j et k dans les directions x, y et z respectivement. L'expression de ces contributions est donnée par :

$$\rho_{i,j,k} = (-1)^n \frac{p_n}{n!} \partial_{x^i, y^j, z^k}^n \delta \quad (2.49)$$

$$U_{i,j,k} = \frac{(-1)^n}{4\pi\epsilon_1} \frac{p_n}{n!} \frac{\partial^n}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \left(\frac{1}{r} \right) \quad (2.50)$$

Dans (2.50) , $n = i + j + k$ et $p_n = \lim_{d \rightarrow 0} (n! q d^n)$ avec la notation du [Jones 1995].

On obtient finalement le développement multipolaire du potentiel électrostatique :

$$U(x, y, z) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^{n-i} \frac{(-1)^n}{4\pi\epsilon_1} \frac{p_n}{n!} \frac{\partial^n}{\partial x^i \partial y^j \partial z^{n-i-j}} \left(\frac{1}{r} \right). \quad (2.51)$$

L'intérêt de ce modèle multipolaire se situe dans le fait que l'on remplace la distribution de charge actuelle ρ (qui est contenu dans la sphère) par une distribution simplifiée avec un ensemble de multipôles (fig.2.3) qui produit la même distribution de potentiel à l'extérieur de la sphère de rayon a . Un des avantages cruciaux de cette approche est qu'elle permettra une étude plus simple de la force et/ou du

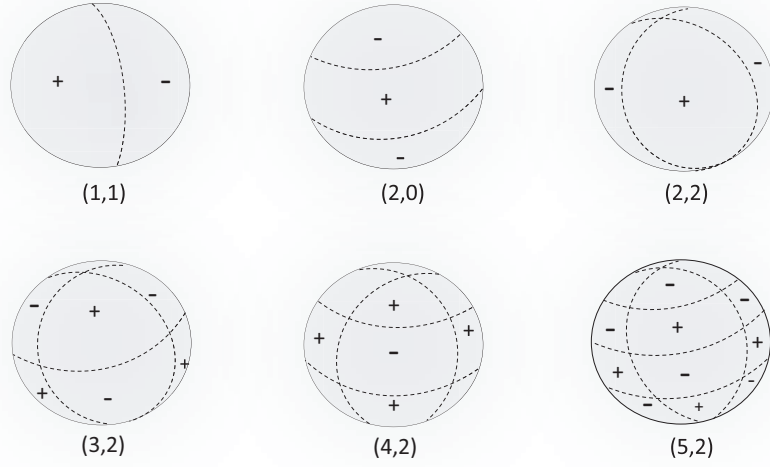


FIGURE 2.4 – Exemples d’harmoniques sphériques et configurations de polarisation associée

couple électrostatique appliqués sur une particule diélectrique en calculant analytiquement ces quantités électromécaniques pour le modèle multipolaire équivalent [Washizu 2004]. Plus loin dans la section 2.2.2 on proposera une méthode d’extraction des moments multipolaires basée sur l’identification numérique des multipôles effectifs³ pour une particule diélectrique soumise à un champ statique dans les cas uniforme et non-uniforme.

2.1.4.1 Lien entre les multipôles et les harmoniques sphériques

L’approche multipolaire construite avec un formalisme physique dans (2.51) peut être rapprochée du développement mathématique utilisant les harmoniques sphériques pour modéliser la polarisation étudiée. Le développement (2.51) est par construction plus facile à représenter physiquement. Ainsi comparons les deux séries (2.16) et (2.51). La première remarque qu’on peut faire est que le développement en série de Taylor (2.51) a $(n+1)(n+2)/2$ termes pour l’ordre n , alors que la série harmoniques sphériques (2.16) n’en possède que $(2n+1)$ pour le même ordre. Donc soit la série de Taylor a des termes redondants, soit la série harmoniques sphériques néglige un degré de liberté de la distribution de charge ρ , ce qui est effectivement le cas : en effet on constate qu’un degré de liberté figurant dans la série de développement multipolaire qui ne donne lieu à aucun potentiel à l’extérieur de la sphère, et qui est omis dans la série harmoniques sphériques.

A noter que ces entiers m et n caractérisant les harmoniques sphériques dans (2.15)

3. On parle de multipôles effectifs en référence aux composantes multipolaires dont la contribution est non nulle.

peuvent être reliés aux multipôles, à travers les quantités $n - m$ et n interprétées sur la sphère unité [Müller 1966]. Pour mieux l'illustrer on peut dire que si la sphère représentait la terre, il contiendrait n méridiens définissant $n+1$ zones verticales (fig. 2.4) et $n - m$ représenterait le nombre de latitudes (cercles horizontaux) définissant des zones (fig. 2.4). Par exemple pour représenter le champ harmonique sphérique généré par un dipôle orienté selon l'axe ox , il suffit de considérer le cas $n = 1$ et $m = 1$. Le cas particulier $m = 0$ correspond à une représentation particulière présentée à part dans le paragraphe suivant.

Multipôles linéaires

Pour certaines situations de polarisation, une représentation particulière en terme de multipôles s'avère plus appropriée, en particulier pour représenter une polarisation qui consiste en une répartition axiale de charges. Cette configuration est en effet modélisée par des multipôles linéaires (fig. 2.5), appelés aussi multipôles axiaux [Stratton 1941].

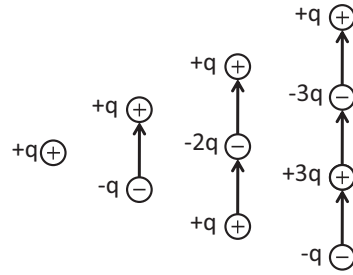


FIGURE 2.5 – Multipôles linéaires selon la représentation de Stratton

Les multipôles linéaires correspondent au cas $m = 0$ dans la représentation en harmoniques sphériques du potentiel multipolaire (2.16) (on parle aussi d'harmoniques sphériques zonales [Ferrers 1877]). Ces multipôles sont des polynômes de Legendre (A.2). A cause de leur nature axiale, le potentiel généré par les multipôles linéaires présente une symétrie azimutale se traduisant par une dépendance uniquement en θ dans un repère sphérique. Le développement en harmoniques sphériques correspondant aux multipôles linéaires est donné par l'équation (A.5).

2.2 Les moments effectifs

Les harmoniques sphériques et le développement du potentiel électrostatique dans cette base de fonctions que nous avons introduits dans la partie précédente nous

permettent de déterminer le potentiel généré par une particule diélectrique soumise à un champ électrique extérieur et ainsi de retrouver le modèle de polarisation multipolaire équivalent, pour déterminer les moments effectifs.

2.2.1 Développement en harmoniques sphériques

A partir du développement général introduit dans la partie 2.1.2, nous identifions ici les valeurs des coefficients des différents potentiels, induit, appliqué et total, dans la base des harmoniques sphériques.

Considérons une particule sphérique de rayon a et de constante diélectrique ε_2 située à l'origine du système de coordonnées et soumise à l'effet d'un potentiel extérieur, s'écrivant sous la forme :

$$U_{ext} = \sum_{n,m} A_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi)$$

Le potentiel électrostatique à l'extérieur de la sphère U_{total} est la contribution du potentiel appliqué et du potentiel induit :

$$\begin{aligned} U_{total} &= U_{ext} + U_{ind} \\ &= \sum_{n,m} A_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) + \sum_{n,m} \frac{B_{n,m}}{r^{n+1}} \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) \end{aligned} \quad (2.52)$$

Le potentiel à l'intérieur de la sphère peut alors être déterminé, et est donné par :

$$U_{int} = \sum_{n,m} C_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi)$$

L'utilisation des conditions aux limites en $r = a$ (B.4), en prenant en compte qu'il ne doit pas y avoir de singularité à l'origine, permet de déterminer les constantes $B_{n,m}$ et $C_{n,m}$ en fonctions de $A_{n,m}$:

$$\begin{aligned} B_{n,m} &= \frac{n(\varepsilon_m - \varepsilon_p)}{(n+1)\varepsilon_m + n\varepsilon_p} a^{2n+1} A_{n,m} \\ &= \frac{K_n}{(2n+1)} a^{2n+1} A_{n,m} \end{aligned} \quad (2.53)$$

et

$$C_{n,m} = \frac{(2n+1)\varepsilon_m}{(n+1)\varepsilon_m + n\varepsilon_p} A_{n,m} \quad (2.54)$$

En utilisant les deux équations (2.52) et (2.53) le terme d'ordre n du potentiel induit $U_{n,ind}$ est :

$$U_{n,ind} = -\frac{K_n}{(2n+1)} a^{2n+1} - \frac{U_{n,ext}}{a^{2n+1}}$$

où

$$K_n = \frac{n(2n+1)(\varepsilon_p - \varepsilon_m)}{(n+1)\varepsilon_m + n\varepsilon_p} \quad (2.55)$$

est un coefficient de polarisation qui représente le moment d'ordre n , proportionnel au facteur de Clausius-Mossotti généralisé d'ordre n .

Les constantes $B_{n,m}$ définissant le potentiel induit par la particule contiennent des informations sur la polarisation multipolaire de celle-ci, et permettent le calcul des moments multipolaires effectifs p_n^m qui jouent un rôle particulier dans le calcul des forces et des couples appliquées sur la particule (voir le chapitre 3). Les moments multipolaires effectifs sont liés aux constantes $B_{n,m}$ par :

$$p_n^m = \sqrt{\frac{2n+1}{4\pi}} \mathcal{N}_n^m B_{n,m} \quad (2.56)$$

où

$$\mathcal{N}_n^m = \sqrt{\frac{2n+1}{4\pi} \frac{(n-m)!}{(n+m)!}}$$

est un facteur de normalisation.

2.2.2 Détermination numérique des moments effectifs

L'étude du développement multipolaire de la polarisation électrostatique permet d'avoir une image qualitative du comportement électrostatique d'une particule en interaction avec le champ extérieur. Il permet en outre de quantifier l'effet de ce champ sur la particule, en l'occurrence la force et le couple qui sont exercés sur cette particule par le champ extérieur via les moments multipolaires [Washizu 2004, Jones 1995, Hartley 1999, Ronald 2010], d'où la nécessité de développer une méthode de détermination de ces moments. Ceci est basé sur l'utilisation du calcul analytique développé dans la section précédente, qui permet d'évaluer la polarisation par l'approche multipolaire, reliée aux harmoniques sphériques (2.1.4.1).

Pour une particule sphérique dans un champ uniforme, le développement multipolaire permet de retrouver le facteur de Clausius-Mossotti représentant le coefficient de polarisation d'ordre 1. Dans les cas plus généraux, on retrouve le facteur de Clausius-Mossotti généralisé, en particulier pour les situations de non-uniformité importante liée au champ appliqué ou à la taille de la particule [Jones 2003]. Cependant, dans le cas de particules de forme quelconque, la détermination de ces coefficients nécessite l'utilisation de méthodes numériques. Une approche d'identification numérique des moments effectifs qui est proposée dans [Ogbi 2012] sera présentée dans la sous-section suivante. L'idée est de déterminer ces moments effectifs en identifiant le modèle multipolaire à partir du potentiel induit de la particule polarisée, calculé sur une sphère qui l'englobe (fig.2.6), en utilisant le développement en harmoniques sphériques. Les modes excités (effectifs) sont repérés et quantifiés en déterminant les coefficients de polarisation en fonction du rapport des propriétés diélectriques de la particule et ceux du milieu fluide de suspension.

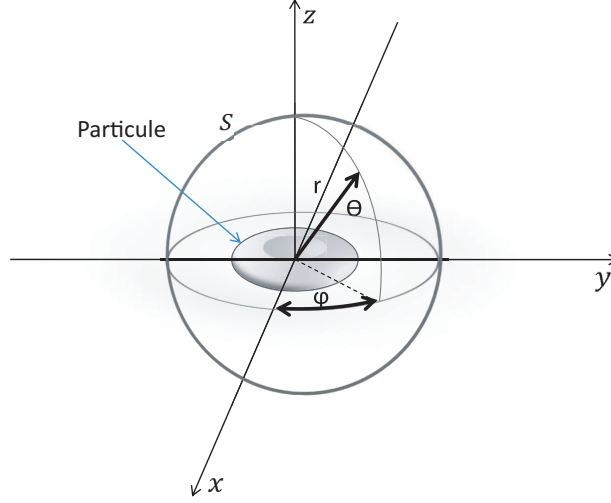


FIGURE 2.6 – Surface d'intégration autour de la particule

En utilisant les relations (2.56), (2.16) et les propriétés d'orthogonalité des harmoniques sphériques (2.1.2), l'expression des coefficients multipolaires est calculée numériquement avec

$$p_n^m = \sqrt{\frac{2n+1}{4\pi}} \mathcal{N}_n^m R^{n+1} \int_S Y_n^m(\theta, \varphi) U_{ind}(R, \theta, \varphi) dS, \quad (2.57)$$

où R désigne le rayon de la sphère d'intégration S , (fig. 2.6). Dans la littérature les coefficients multipolaires linéaires sont notés p_n au lieu de p_n^0 . Dans la suite nous adopterons cette notation.

2.2.3 Champ uniforme

Considérons une particule diélectrique symétrique à symétrie de révolution cylindrique, de permittivité ε_p , immergée dans un milieu (fluide) de permittivité ε_m , et soumise à un champ uniforme. Le problème tridimensionnel est transformé en deux problèmes axisymétriques illustrés à la figure 2.7.

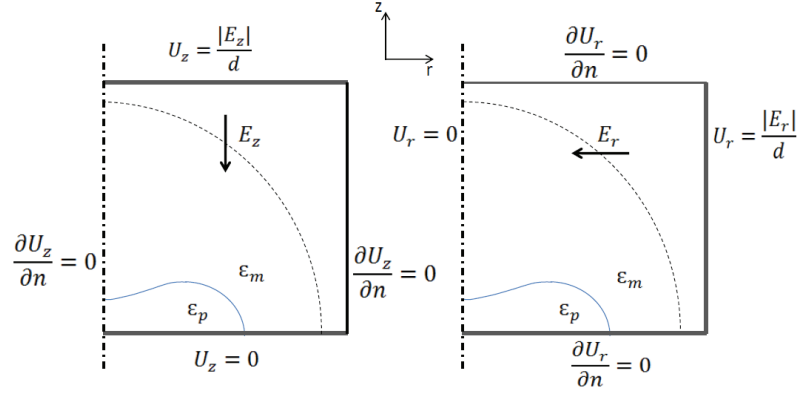


FIGURE 2.7 – Conditions aux limites pour le calcul du potentiel radial et suivant l'axe de symétrie

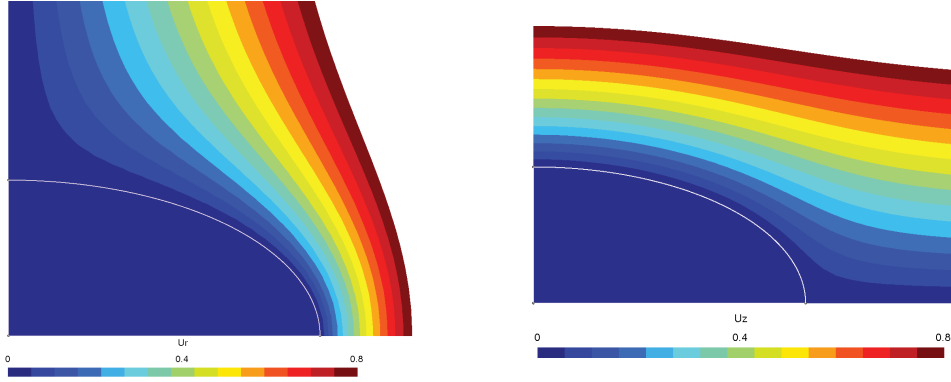


FIGURE 2.8 – Potentiels extérieurs (radial et axial) calculés en utilisant la librairie éléments finis GetFem++.

Le potentiel électrostatique dans l'espace est obtenu en utilisant les deux équations ;

$$U(r, z, \theta) = U_z + U_r \cos \varphi \quad (2.58)$$

Deux problèmes pour U_z et U_r sont donc à résoudre en utilisant la formulation faible correspondante à chacune de ces composantes, il s'agit précisément de résoudre dans le domaine de calcul Ω (fig.2.7) :

Le premier problème avec la solution U_r vérifiant :

$$\int_{\Omega} r \left(\frac{\partial U_r}{\partial r} \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{\partial U_r}{\partial z} \frac{\partial v}{\partial z} \right) dr dz + \int_{\Omega} \frac{U_r}{r} v dr dz = 0 \quad (2.59)$$

pour toute fonction³ v définie sur Ω . Le deuxième problème avec la solution U_z :

$$\int_{\Omega} r \left(\frac{\partial U_z}{\partial r} \frac{\partial v}{\partial r} + \frac{\partial U_z}{\partial z} \frac{\partial v}{\partial z} \right) dr dz + \int_S U_z v ds = 0. \quad (2.60)$$

3. fonction test

pour toute fonction v définie sur Ω .

Le calcul numérique fait avec la méthode des éléments finis est réalisé en utilisant la librairie Getfem++ [Renard 2008] (fig. 2.2.3) et les résultats sont présentés pour différentes formes de particules en distinguant les cas sphérique et non-sphérique.

2.2.3.1 Cas sphérique

Le cas d'une sphère dans un champ électrique uniforme permet de vérifier la cohérence de la méthode d'extraction numérique par comparaison avec les résultats analytiques disponibles pour la sphère (2.55). Le coefficients de polarisation dans le cas d'une sphère est donnée analytiquement (à une constante multiplicative près) par le facteur de Clausius-Mossotti généralisé défini dans 2.2.1. Dans le cas d'un champ extérieur uniforme celui-ci se réduit au facteur de Clausius-Mossotti classique :

$$f_{CM} = K_1 = \frac{\varepsilon_p - \varepsilon_m}{\varepsilon_p + 2\varepsilon_m} \quad (2.61)$$

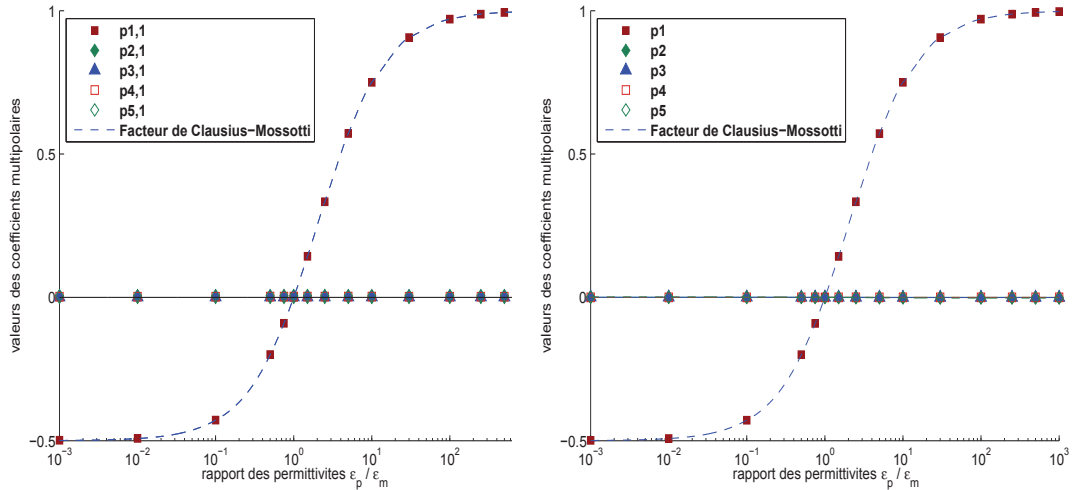


FIGURE 2.9 – Coefficients de polarisation d'une sphère dans la direction radiale (gauche) et axiale (droite) : seuls $p_{1,1}$ et p_1 sont non nuls.

Les coefficients de polarisation selon la direction radiale et selon la direction axiale sont identiques, ce qui est attendu à cause de l'isotropie de la géométrie d'une sphère.

2.2.3.2 Cas d'une formes non-sphériques

Les particules réelles ont des formes diverses, souvent approchées dans la modélisation par des géométries plus ou moins régulières. L'approximation par une forme ellipsoïde est particulièrement adoptée pour plusieurs type de particules dans la littérature. Le cas particulier du sphéroïde permet d'illustrer l'effet de la géométrie sur la polarisation multipolaire à quantifier.

Pour un sphéroïde de demi-axes a , b et c avec ($b = c$) (fig. 2.10)-(fig. 2.12), les résultats sont présentés en fonction du rapport d'excentricité ($\frac{a}{b}$).

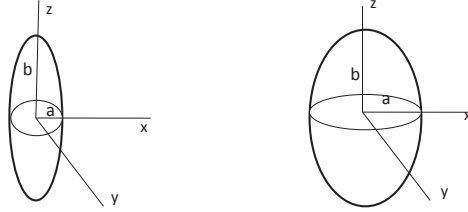


FIGURE 2.10 – sphéroïde prolate ($e = \frac{a}{b} \leq 1$) pour les excentricités 1 : 5 et 1 : 2.

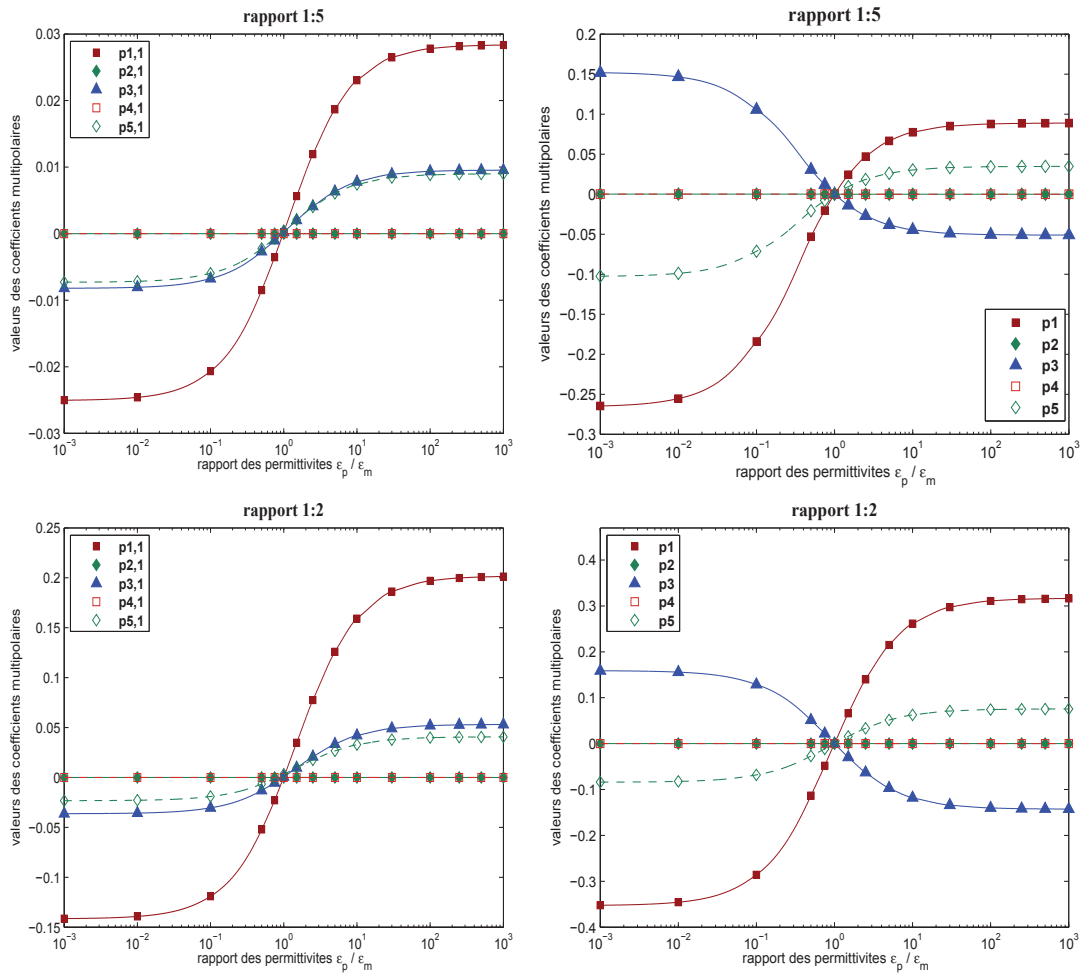


FIGURE 2.11 – Coefficients de polarisation pour sphéroïde prolate en fonction du rapport de permittivité entre la particule et le milieu de suspension, pour différents rapports d'excentricités.

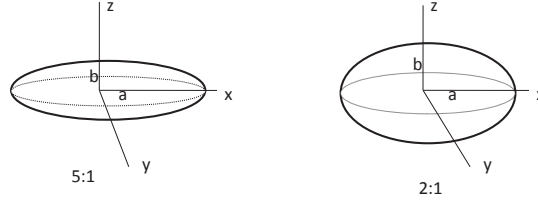
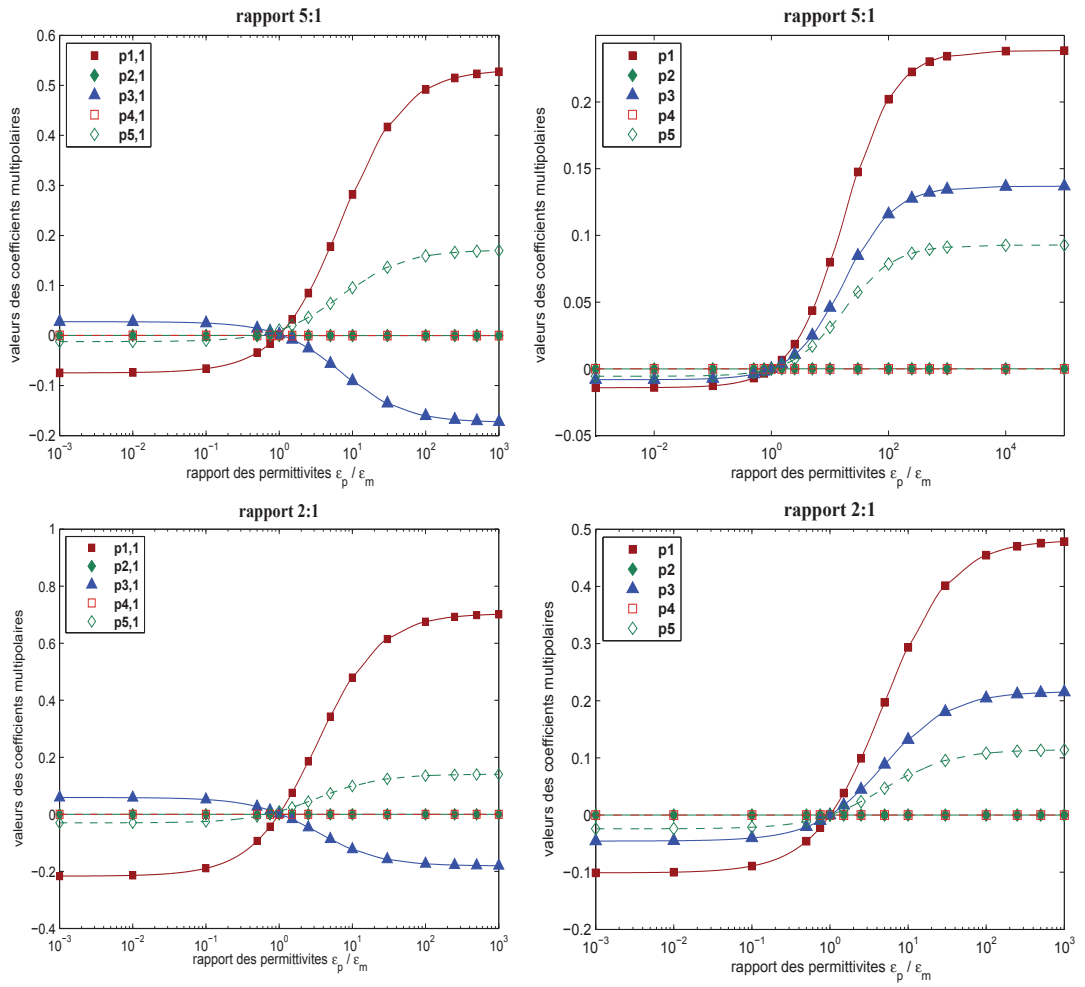
FIGURE 2.12 – sphéroïde oblate ($e = \frac{a}{b} \geq 1$) pour les excentricités 5 : 1 et 2 : 1.

FIGURE 2.13 – Coefficients de polarisation d'un sphéroïde oblate en fonction du rapport de permittivité entre la particule et le milieu de suspension, pour différents rapports d'excentricités.

Plusieurs tendances peuvent être identifiées dans les résultats obtenus à la figure 2.13. En particulier, quand l'excentricité e est plus grande que 1, i.e. pour un sphéroïde oblate, les moments suivant la direction radiale dominent, avec des valeurs

plus importantes quand la permittivité de la particule est plus grande que celle du milieu de suspension. Pour ϵ inférieur à 1, i.e pour un sphéroïde prolata, les moments ont des valeurs relativement faibles avec une dominance de ceux suivant la direction axiale, et un signe qui change de façon presque symétrique quand on passe du cas où la permittivité de la particule est plus grande que celle du milieu au cas contraire.

2.2.4 Champ non uniforme

Nous venons de voir que dans le cas d'un champ uniforme, la polarisation multipolaire d'une particule sphérique est parfaitement représentée par la composante dipolaire avec un coefficient de polarisation donné par le facteur de Clausius-Mossotti (2.61). Les ordres supérieurs du développement multipolaire ne sont significatifs que dans le cas d'une particules non-sphériques. Une autre situation d'interaction champ électrique-particule plus souvent rencontrée dans la pratique est celui d'une sphère placée dans un champ non uniforme [Schnelle 1999b]. Contrairement au cas du champ uniforme, les ordres multipolaires supérieurs ne sont pas nuls. La configuration d'électrodes pointe-plan souvent utilisée pour réaliser des phénomènes de lévitation [Jones 1995] permet de générer un champ non uniforme particulier. Pour une particule sphérique placée dans un système d'électrodes pointe-plan

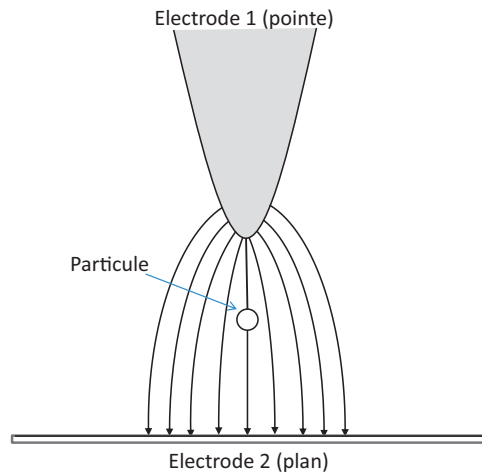


FIGURE 2.14 – Configuration pointe-plan

(fig. 2.14), on utilise la méthode d'extraction proposée dans la partie 2.2.2. Au vu de la symétrie du système, le problème de départ peut être ramené à un problème 2D. Les simulations sont réalisées en utilisant la méthode des éléments finis avec Comsol Multiphysics 3.5.

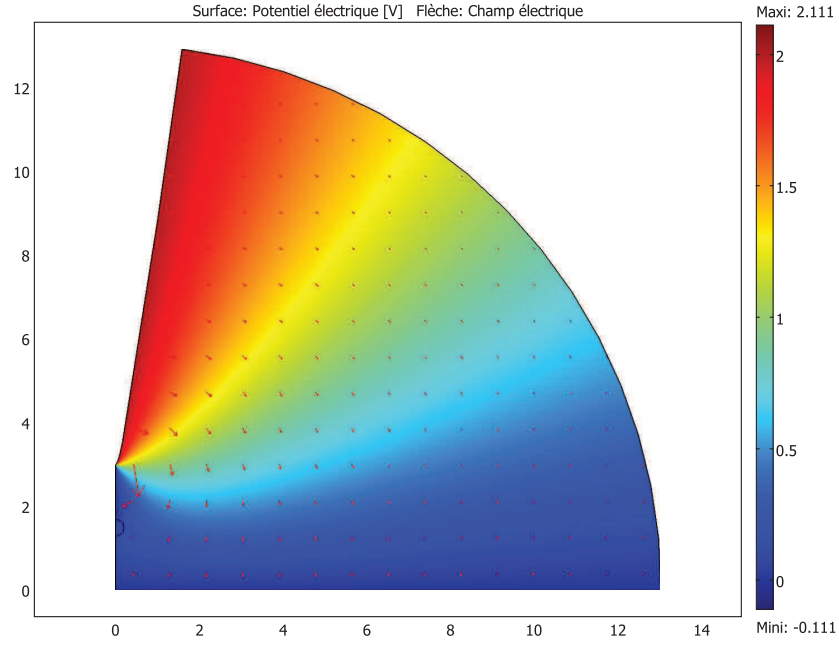


FIGURE 2.15 – Distribution du potentiel et carte du champ électrique calculés avec Comsol Multiphysics 3.5.

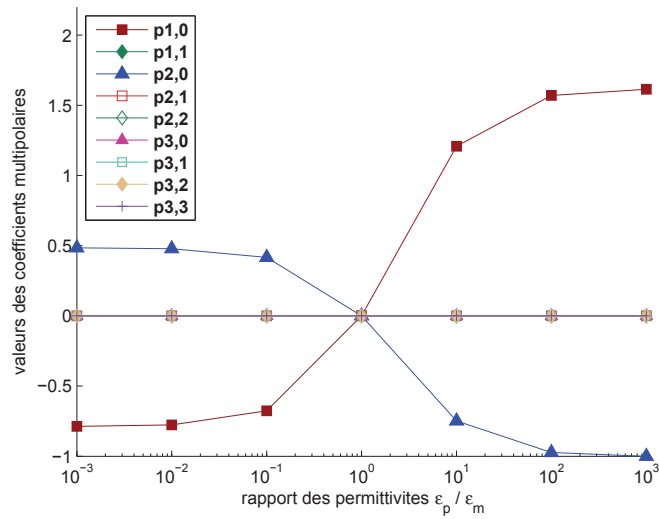


FIGURE 2.16 – Coefficients de polarisation d'une particule polarisée sous l'effet d'un champ non-uniforme issu d'un système d'électrode pointe-plan.

D'après ce résultat, deux informations peuvent être identifiées :

- Les ordres significatifs sont $n = 1$ (dipôle) et $n = 2$ (quadrupole).

— Les multipôles effectifs identifiées sont des multipôles linéaires (2.1.4.1).

Le premier point montre que la composante quadripolaire ne prend des valeurs significatives que pour la composante axiale, et le deuxième point montre que le modèle multipolaire pertinent pour la polarisation dans le problème considéré est celui des multipôles linéaires. Cela justifie le recours fréquent à ce modèle multipolaire dans les phénomènes de lévitation où le champ électrique est dominé par sa composante axiale z [Jones 1995, Jones 1986].

2.3 Modèle multicouche

Jusqu'à présent, le modèle de particule considéré était celui d'une particule homogène. Cependant la plupart de particules biologiques ont des structures plus complexes, notamment avec la présence de la membrane enveloppant le cytoplasme pour les cellules biologiques. Les modèles couramment utilisés pour étudier le comportement électrique d'une cellule dans ces cas sont des modèles analytiques et semi-analytiques fournissant une approche plus ou moins adaptée à la compréhension du phénomène. Ci-dessous, nous décrivons une méthode pour traiter les cas de cellules sphériques et ellipsoïdales multicouches.

2.3.1 Modèle multicouche sphérique

Pour les particules de structure multicouche (fig. 2.17), les propriétés électriques des différentes régions composant cette structure contribuent à sa réponse électrique lors de l'application d'un champ extérieur. La méthode pour décrire ces particules hétérogènes présentée ici correspond au modèle de type "smeared-out" [Huang 1992]. Selon cette approche, ces particules sont décrites électriquement par une permittivité équivalente déterminée selon le processus suivant :

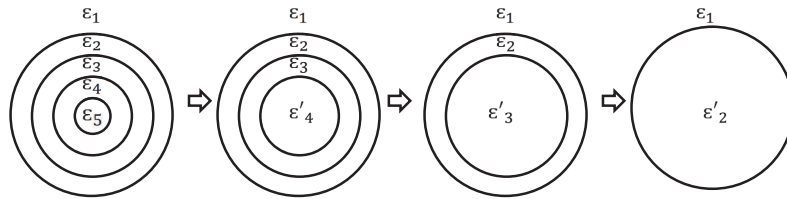


FIGURE 2.17 – Processus de détermination de la permittivité équivalente pour une sphère multicouche.

Supposons que la structure de la particule multicouche soit composée de N sphères concentriques de rayon R_i caractérisées par des permittivités ε_i où $i = 1, 2, \dots, N+1$, avec $N = 1$ correspondant au milieu externe (fig.2.17). La permittivité effective de l'ensemble constitué des couches $N+1$ et N est d'abord déterminée

par la résolution de l'équation de Laplace dans les les trois régions de la structure élémentaire considérée à cette étape. En répétant ce processus (deux à deux) successivement (pour atteindre la couche $N = 2$) selon le schéma illustré (fig. 2.17), on obtient une sphère homogène équivalente de rayon R_{N+1} de permittivité équivalente en utilisant un modèle dipolaire ou multipolaire.

Permittivité équivalente par le modèle dipolaire (Champ uniforme)

Pour étudier le comportement électrique de particules multicouches dans le cas où la particule est exposée à un champ uniforme, nous avons montré précédemment que l'utilisation du modèle dipolaire est adaptée. La permittivité équivalente issue de ce modèle est donnée par :

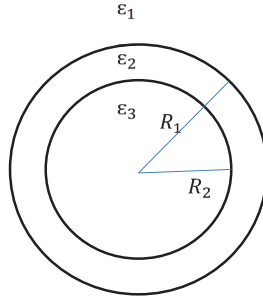


FIGURE 2.18 – Modèle double-couche sphérique

$$(\varepsilon_2)' = \varepsilon_2 \frac{a^3 + 2K_1}{a^3 - 2K_1} \quad (2.62)$$

où $a = R_1/R_2$. La valeur ε_2' est une permittivité homogène équivalente qui remplace ε_2 dans le facteur de Clausius-Mossoti (2.61). Pour les particules à plusieurs couches ($N \geq 2$) le schéma "smeared-out" décrit ci-dessus est appliqué. Le passage élémentaire à la $i^{\text{ème}}$ étape dans cette méthode est donné par :

$$\left(\frac{\varepsilon'_{i+1} - \varepsilon'_i}{\varepsilon'_{i+1} + 2\varepsilon'_i} \right) = \left(\frac{R_i}{R_{i-1}} \right)^3 \left(\frac{\varepsilon'_i - \varepsilon'_{i-1}}{\varepsilon'_i + 2\varepsilon'_{i-1}} \right), \quad 1 \leq i \leq N. \quad (2.63)$$

Il est à noter que c'est ce modèle de permittivité équivalente qui est la plupart du temps utilisé dans la littérature, même dans le cas où le champ est non-uniforme [Asami 2006, Hughes 2003, Hanai 1979, Irimajiri 1979]. Dans cette configuration de non-uniformité du champ, il est plus adapté de calculer la permittivité équivalente par le modèle multipolaire.

Permittivité équivalente par le modèle multipolaire (Champ non-uniforme)

L'utilisation du développement multipolaire (2.51) permet une détermination de permittivité équivalente plus générale. Ce développement est donnée par :

$$U_1 = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n A_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \frac{B_{n,m} \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi)}{r^{n+1}}, \quad (2.64)$$

Les constantes $B_{n,m}$ sont déterminées par application des conditions de transmission (B.4) :

$$B_{n,m} = -\frac{n[(\varepsilon_2)'_n - \varepsilon_1]}{n(\varepsilon_2)'_n + (n+1)\varepsilon_1} R_1^{2n+1} A_{n,m} \quad (2.65)$$

Avec

$$(\varepsilon_2)'_n = \varepsilon_2 \frac{a^{(2n+1)} + (n+1)K^{(n)}}{a^{(2n+1)} - nK^{(n)}} \quad (2.66)$$

On retrouve ainsi la permittivité équivalente issue du modèle multipolaire. Notons que le cas particulier $n = 1$ correspond bien à la permittivité obtenue en utilisant le modèle dipolaire (2.62).

Les expressions des potentiels dans toutes les régions de l'espace sont données dans l'annexe B.

2.4 Conclusion

Nous avons présenté dans ce chapitre une méthode pour représenter la polarisation d'une particule diélectrique soumise à un champ extérieur par un modèle multipolaire prenant en compte la nature du champ appliqué et la forme de la particule étudiée. Pour le cas d'une particule sphérique dans un champ uniforme, le développement se réduit au premier ordre, avec un coefficient de polarisation proportionnel au facteur de Clausius-Mossotti. Le cas de particules non sphériques, illustré par des configurations sphéroïdes, met en évidence le rôle des ordres supérieurs dans la détermination des moments effectifs traduisant le phénomène de polarisation. Nous avons montré que les configurations multicouches peuvent également être étudiées avec cette approche dipolaire ou multipolaire par un processus d'homogénéisation.

Bibliographie

- [Asami 2006] Koji Asami. *Dielectric dispersion in biological cells of complex geometry simulated by the three-dimensional finite difference method*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 39, no. 3, page 492, 2006. (Cité en page 59.)
- [Ferrers 1877] N.M. Ferrers. *An elementary treatise on spherical harmonics and subjects connected with them*. Macmillan and co., 1877. (Cité en page 48.)
- [Franklin 2005] J. Franklin. *Classical electromagnetism*. Pearson Addison-Wesley, 2005. (Cité en page 44.)

- [Gumerov 2005] Nail A Gumerov et Ramani Duraiswami. Fast multipole methods for the helmholtz equation in three dimensions. Elsevier, 2005. (Cité en page 44.)
- [Hanai 1979] T. Hanai, K. Asami et N. Koizumi. *Dielectric theory of concentrated suspension of shell-spheres in particular reference to the analysis of biological cell suspensions*. Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto University, vol. 57, page 297, 1979. (Cité en page 59.)
- [Hartley 1999] L. Hartley, K.V.I.S. Kalera et Paulb R. *Quadrupole levitation of microscopic dielectric particles*. Journal of Electrostatics, vol. 46, no. 4, pages 233–246, Mai 1999. (Cité en page 50.)
- [Huang 1992] Y Huang, R Holzel, R Pethig et Xiao-B Wang. *Differences in the AC electrodynamics of viable and non-viable yeast cells determined through combined dielectrophoresis and electrorotation studies*. Physics in Medicine and Biology, vol. 37, no. 7, page 1499, 1992. (Cité en pages 18 et 58.)
- [Hughes 2003] M.P. Hughes. Nanoelectromechanics in engineering and biology. Nano- and microscience, engineering, technology, and medicine series. CRC Press, 2003. (Cité en pages 20, 59 et 103.)
- [Irimajiri 1979] Akihiko Irimajiri, Tetsuya Hanai et Akira Inouye. *A dielectric theory of "multi-stratified shell" model with its application to a lymphoma cell*. Journal of Theoretical Biology, vol. 78, no. 2, pages 251 – 269, 1979. (Cité en page 59.)
- [Jackson 1998] John D. Jackson. Classical Electrodynamics Third Edition. Wiley, third édition, Août 1998. (Cité en pages 41 et 44.)
- [Jones 1986] T.B Jones. *Dielectrophoretic force in axisymmetric fields*. J. Electrostatics, vol. 18, pages 55–62, 1986. (Cité en pages 58, 64 et 65.)
- [Jones 1995] T. B. Jones. Electromechanics of particles. Cambridge Univ Press, 1995. (Cité en pages 9, 14, 15, 16, 18, 20, 21, 36, 45, 46, 50, 56, 58, 63, 64 et 81.)
- [Jones 2003] Thomas B Jones. *Basic theory of dielectrophoresis and electrorotation*. IEEE engineering in medicine and biology magazine : the quarterly magazine of the Engineering in Medicine & Biology Society, vol. 22, no. 6, pages 33–42, 2003. (Cité en pages 9, 10, 12, 19, 22, 44, 50 et 65.)
- [Müller 1966] C. Müller. Spherical harmonics. Lecture notes in mathematics. Springer-Verlag, 1966. (Cité en page 48.)
- [Ogbi 2012] A. Ogbi, L. Nicolas, R. Perrussel, S. J. Salon et D. Voyer. *Numerical Identification of Effective Multipole Moments of Polarizable Particles*. IEEE Transactions on Magnetism, vol. 48, pages 675–678, Février 2012. (Cité en pages 50 et 70.)
- [Pohl 1978] H. A. Pohl. Dielectrophoresis : the Behavior of Neutral Matter in Nonuniform Electric Fields. Cambridge University Press, 1978. (Cité en pages 8, 20, 36 et 65.)

- [Raab 2005] R.E. Raab et O.L. Delange. Multipole theory in electromagnetism. Oxford University Press, 2005. (Cité en page 43.)
- [Renard 2008] Yves Renard et Julien Pommier. *getfem++ finite element library*, 2008. <http://download.gna.org/getfem/html/homepage>. (Cité en page 53.)
- [Ronald 2010] Pethig Ronald. *Dielectrophoresis : Status of the theory, technology, and applications*. Biomicrofluidics, vol. 4, no. 2010, page 022811, 2010. (Cité en pages 8, 18, 22, 50 et 63.)
- [Sauer 1985] F.A. Sauer et R.W. Schlögel. Torques exerted on cylinders and spheres by external electromagnetic fields, pages 203–251. Eds. New York : Plenum, 1985, 1985. (Cité en pages 36 et 79.)
- [Schnelle 1999] Thomas Schnelle, Torsten Müller, Stefan Fiedler et Günter Fuhr. *The influence of higher moments on particle behaviour in dielectrophoretic field cages*. Journal of Electrostatics, vol. 46, no. 1, pages 13–28, Mars 1999. (Cité en pages 56, 64, 72 et 99.)
- [Stratton 1941] Julius Adams Stratton. Electromagnetic theory. McGraw-Hill, New York, 1st ed. édition, 1941. (Cité en pages 12, 36, 43, 44, 48, 63, 66, 79 et 127.)
- [Washizu 1994] M. Washizu et T. Jones. *Multipolar dielectrophoretic force calculation*. Journal of Electrostatics, vol. 33, no. 2, pages 187–198, 1994. (Cité en page 45.)
- [Washizu 2004] Masao Washizu. *Equivalent multipole-moment theory for dielectrophoresis and electrorotation in electromagnetic field*. Journal of Electrostatics, vol. 62, no. 1, pages 15 – 33, 2004. (Cité en pages 47 et 50.)

Etude électromécanique de phénomènes diélectrophorétiques

Sommaire

3.1	Calcul de la force et du couple électromécanique	64
3.1.1	Introduction et notations	64
3.1.2	Force et couple selon le modèle du moment dipolaire effectif .	65
3.1.3	Force exercée sur une sphère diélectrique par un champ généré par une charge ponctuelle	65
3.1.4	Force exercée sur les multipôles linéaires	67
3.1.5	Force exercée sur les multipôles (cas cartésien général)	68
3.1.6	Calcul de la force utilisant le développement en harmoniques sphériques	70
3.2	Particules ou milieu de suspension présentant des pertes .	72
3.2.1	Calcul de la force et du couple par les moments effectifs . . .	72
3.2.2	Tenseur de contraintes de Maxwell	79
3.2.3	Application à une configuration pointe-plan	81
3.2.4	Particule au centre d'un système quadrupolaire d'électrodes .	84
3.3	Conclusion	87
	Bibliographie	87

L'évaluation des effets électromécaniques sur les particules diélectriques, en particulier les cellules biologiques, est une étape cruciale, non seulement pour la compréhension et la maîtrise des phénomènes diélectrophorétiques, mais aussi pour la conception et l'optimisation des dispositifs utilisés pour la manipulation des ces particules [Gao 2003, Morgan 2003, Jones 1994, Hughes 1994]. Les applications pratiques sont diverses et multiples, en biotechnologies, en chimie..etc. (voir notamment [Ronald 2010] et Chapitre 1).

Dans les développements théoriques classiques, ces particules sont habituellement modélisées comme des formes sphériques homogènes. Pour calculer ces effets électromécaniques, notamment la force de diélectrophorèse F_{DEP} et le couple de rotation T_{ROT} , plusieurs approches sont possibles. Le principe de la variation d'énergie, utilisé par Pohl [Pohl 1971] et Stratton [Stratton 1941], décrit une particule sans perte dans un milieu sans perte. Toutefois, si la particule et son milieu de suspension présentent des pertes, la loi de conservation de l'énergie n'est plus respectée [Jones 1995]. Les dérivations rigoureuses de la force et du couple réalisées

par Sauer [Nicolini 1998] sont importantes du point de vue de l'électrodynamique classique. Elles sont basées sur une formulation du tenseur des contraintes de Maxwell intégré sur la surface sphérique de la particule dans un milieu avec pertes sous un champ électrique non uniforme, en introduisant des pseudo-variables physiques. Malheureusement ces dérivations ne peuvent traiter le cas général d'une particule quelconque car basées sur des développements analytiques. Ainsi ces travaux se limitent au simple cas d'une sphère homogène immergée dans un liquide diélectrique, avec un champ électrique appliqué légèrement non uniforme. C'est pourquoi un intérêt particulier peut être porté à la méthode du moment dipolaire effectif [Jones 1995] et à l'approche par moments multipolaires [Jones 1986, Jones 1995]. Nous avons vu précédemment que les méthodes numériques permettent une mise en oeuvre relativement aisée de cette méthode pour des géométries complexes.

La méthode du tenseur de Maxwell reste plus coûteuse que la méthode du moment dipolaire effectif, même lorsque celle-ci est traitée numériquement. L'intérêt de cette dernière tient au fait qu'elle est simple à utiliser tout en fournissant des résultats valables dans de nombreux cas où les dérivations rigoureuses basées sur le tenseur de Maxwell semblent difficiles voire impossibles. Néanmoins, il existe des situations où ces deux approches donnent des résultats présentant des différences relativement significatives [Masao 1993, Schnelle 1999b, Karan 2011]. Une comparaison entre les deux approches a été effectuée par Liu et Bau [Liu 2004] dans une configuration de particules cylindriques et sphériques plongées dans des milieux semi-infinis.

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons au calcul de la force et du couple aussi bien par la méthode du moment dipolaire effectif que par celle des moments multipolaires, ainsi que par la méthode du tenseur de Maxwell. Des résultats numériques seront présentés pour les différentes approches, dans des situations où les particules sont plongées dans des champs générés par des micro-systèmes tels que ceux couramment utilisés dans les applications diélectrophorétiques (décrites dans le chapitre 1).

3.1 Calcul de la force et du couple électromécanique

Dans cette partie nous rappellerons d'abord l'expression de la force et du couple exercés par un champ électrique sur un dipôle. Puis nous développerons le calcul des moments pour le cas d'un champ généré par une charge ponctuelle sur une sphère diélectrique. Ce développement sera ensuite généralisé au calcul de la force exercée par un champ électrique quelconque sur des multipôles linéaires, puis au calcul de la force exercée sur des multipôles généraux. Suivant la configuration étudiée (système électrode-particule), le calcul de la force peut être obtenu plus aisément en utilisant le développement multipolaire de celle-ci dans sa représentation en harmoniques sphériques, ceci est l'objet de la dernière section de cette partie.

3.1.1 Introduction et notations

D'après la théorie fondamentale de l'électromécanique, la force et le couple exercés par un champ électrique sur une particule diélectrique sont donnés par [Committee 1950] :

$$\overline{F} = \int \sigma_t(r) \overline{E} dv \quad (3.1)$$

$$\overline{T} = \int \sigma_t(r) (r \times \overline{E}) dv \quad (3.2)$$

où σ_t représente la charge totale induite dans la particule par l'effet du champ extérieur $\overline{E}$. Pour calculer ces quantités, deux approches sont présentées dans ce chapitre ; l'approche par la méthode des moments effectifs et l'approche basée sur le tenseur des contraintes de Maxwell.

Dans la suite quelques notations seront adoptées : une lettre avec une barre supérieure signifie qu'il s'agit d'un vecteur, de même n barres font référence à un tenseur d'ordre n. Les quantités portant une barre inférieure sont des quantités complexes et le * désigne le conjugué complexe.

3.1.2 Force et couple selon le modèle du moment dipolaire effectif

Le modèle le plus communément utilisé pour le calcul de la force et du couple exercé sur une particule par un champ électrique externe est le modèle du dipôle ponctuel [Pohl 1978, Jones 1986, Jones 2003] :

$$\overline{F} = (\overline{p}_1 \cdot \nabla) \overline{E} \quad (3.3)$$

et

$$\overline{T} = \overline{p}_1 \times \overline{E}. \quad (3.4)$$

Le moment dipolaire effectif $\overline{p}_1$ est donné pour une sphère diélectrique de rayon a et de permittivité ε_1 par :

$$\overline{p}_1 = 4\pi a^3 \varepsilon_1 K^{(1)} \overline{E} \quad (3.5)$$

où $K^{(1)}$ est le facteur de Clausius-Mossotti.

On retrouvera ce modèle comme cas particulier de la méthode des moments multipolaires 3.1.5.

3.1.3 Force exercée sur une sphère diélectrique par un champ généré par une charge ponctuelle

Un point de départ pour étudier le cas d'une particule sphérique plongée dans un champ non uniforme est celui du champ engendré par une charge électrique ponctuelle au voisinage de laquelle sera placée la sphère diélectrique modélisant la particule (fig. 3.1). Le comportement électrique de la sphère peut ensuite être déduit

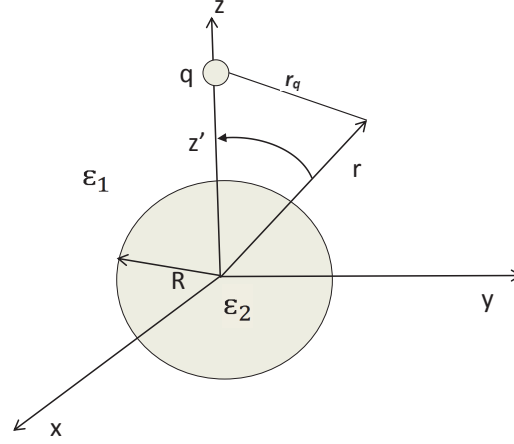


FIGURE 3.1 – Une sphère diélectrique immergée dans un fluide diélectrique est soumise à un champ électrique généré par une charge ponctuelle q .

pour un champ électrique quelconque en reliant les moments multipolaires linéaires induits aux dérivées spatiales successives du champ électrique.

La solution générale de l'équation de Laplace pour le potentiel électrique électrostatique s'écrit :

$$U^{in}(r, \theta) = \sum_{n=0}^{+\infty} C_n r^n P_n(\cos(\theta)), \quad r \leq R \quad (3.6)$$

$$U^{out}(r, \theta) = \frac{q}{4\pi\epsilon_1 r_q} + \sum_{n=0}^{+\infty} B_n r^{n+1} P_n(\cos(\theta)), \quad r \geq R \quad (3.7)$$

où les $P_n(\cos \theta)$ sont les polynômes de Legendre définies dans l'annexe C. Les constantes B_n et C_n sont déterminées en utilisant les conditions aux limites à l'interface entre le milieu de suspension et la particule, plus précisément :

$$U^{in}(r = R, \theta) = U^{out}(r = R, \theta), \quad (3.8)$$

$$\epsilon_2 E_n^{in}(r = R, \theta) = \epsilon_1 E_n^{out}(r = R, \theta). \quad (3.9)$$

En utilisant le développement [Stratton 1941] :

$$\frac{1}{r_q} = \frac{1}{z'} \sum_{n=0}^{+\infty} \left(\frac{r}{z'}\right)^n P_n(\cos(\theta)) \quad (3.10)$$

avec (3.8) et (3.9), on obtient la forme des coefficients B_n et C_n :

$$C_n = \frac{-q}{4\pi\varepsilon_1} \frac{n(\varepsilon_2 - \varepsilon_1)}{n\varepsilon_2 + (n+1)\varepsilon_1} \frac{R^{2n+1}}{z'^{n+1}} \quad (3.11)$$

$$B_n = \frac{q}{4\pi\varepsilon_1} \frac{2(n+1)}{n\varepsilon_2 + (n+1)\varepsilon_1} \frac{1}{z'^{n+1}} \quad (3.12)$$

Par identification en utilisant (3.7), le potentiel induit par le multipôle linéaire d'ordre n s'écrit :

$$p^{(n)} = 4\pi\varepsilon_1 B_n \text{ soit } p^{(n)} = \frac{2q(n+1)}{n\varepsilon_2 + (n+1)\varepsilon_1} \frac{1}{z'^{n+1}} \quad (3.13)$$

La loi de Coulomb permet d'exprimer le champ électrique au centre de la particule causé par la présence de la charge ponctuelle :

$$\overline{E}(z=0) = - \left(\frac{q}{4\pi\varepsilon_1 z'^2} \right) \hat{z} \quad (3.14)$$

$$\frac{\partial^n \overline{E}}{\partial z^n} = - \left(\frac{(n+1)!q}{4\pi\varepsilon_1 z'^{n+2}} \right) \hat{z} \quad (3.15)$$

En utilisant ces expressions avec (3.12) et (3.13), on a :

$$p^{(n)} = \frac{4\pi\varepsilon_1 K^{(n)} R^{2n+1}}{(n-1)!} \frac{\partial^{n-1} E_z}{\partial z^{n-1}} \quad (3.16)$$

où on retrouve le facteur de Clausius-Mossotti, rencontré précédemment :

$$K^{(n)} = \frac{\varepsilon_1 - \varepsilon_1}{n\varepsilon_1 + (n+1)\varepsilon_2} \quad (3.17)$$

L'expression de la force exercée sur la sphère est alors [Jones 1985] :

$$\overline{F} = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{p^{(n)}}{n!} \frac{\partial^n E_z}{\partial z^n} \hat{z}. \quad (3.18)$$

3.1.4 Force exercée sur les multipôles linéaires

La force exercée par le champ extérieur sur le multipôle d'ordre n est donnée par [Jones 1985] :

$$F_z^{(n)} = p^{(n)} \frac{\partial^n E_z}{\partial z^n} \quad (3.19)$$

ce qui conduit à :

$$F_z^{(n)} = \frac{2\pi\varepsilon_1 K^{(n)} R^{2n+1}}{n!(n-1)!} \frac{\partial}{\partial z} \left[\frac{\partial^{n-1} E_z}{\partial z^{n-1}} \right]^2 \quad (3.20)$$

Cette expression convient pour le calcul de la force dans le cas d'un champ axisymétrique. Elle sera ainsi exploitée pour le cas de la configuration pointe-plan plus loin dans la sous-section 3.2.3.

La généralisation au cas des multipôles linéaires généraux est présentée dans la suite suivant deux formalismes : l'un est basé sur le développement de Taylor (cartésien) et le second basée sur le développement multipolaire utilisant les harmoniques sphériques.

3.1.5 Force exercée sur les multipôles (cas cartésien général)

Comme vu dans le chapitre précédent, le potentiel total à l'extérieur de la particule contient la donnée du champ extérieur et du champ induit :

$$U_{n,total} = U_{n,ext} + U_{n,ind} \quad (3.21)$$

Le potentiel extérieur $U_{n,ext}$ peut être ré-exprimé en utilisant son développement polynomial en x, y et z :

$$U_{n,ext} = - \sum_{i+j+k=n} C_{i,j,k} x^i y^j z^k \quad (3.22)$$

où

$$C_{i,j,k} = \frac{1}{i!j!k!} \left[\frac{\partial^n U_{n,ext}}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \right]_{\vec{r}=0} \quad (3.23)$$

En utilisant (3.21) et (3.22), le potentiel induit devient :

$$U_{n,ind} = - \frac{K^{(n)}}{2n+1} a^{2n+1} \sum_{i+j+k=n} C_{i,j,k} \frac{x^i y^j z^k}{r^{2n+1}} \quad (3.24)$$

D'autre part, puisque $U_{n,ind}$ est une fonction harmonique d'ordre $(n+1)$, elle peut être développée en utilisant (2.50) :

$$U_{n,ind} = \sum_{i+j+k=n} (-1)^n D_{i,j,k} \frac{\partial^n}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \left(\frac{1}{4\pi r} \right) \quad (3.25)$$

ou encore

$$U_{n,ind} = \sum_{i+j+k=n} D_{i,j,k} \frac{(2n-1)!!}{4\pi} \left[\frac{x^i y^j z^k}{r^{2n+1}} + \text{termes en } \frac{1}{r^{2n-1}}, \frac{1}{r^{2n-3}}, \dots \right] \quad (3.26)$$

où $(2n+1)!! = 1 \cdot 3 \cdot 5 \cdot \dots \cdot (2n-1)(2n+1)$. En égalisant (3.24) avec (3.25), quand $r \rightarrow 0$, on obtient une expression pour $D_{i,j,k}$:

$$D_{i,j,k} = - \frac{4\pi K^{(n)} a^{2n+1}}{(2n+1)!!} C_{i,j,k} \quad (3.27)$$

$$= \frac{4\pi K^{(n)} a^{2n+1}}{(2n+1)!!} \frac{1}{i!j!k!} \frac{\partial^n U_{n,ext}}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \quad (3.28)$$

En considérant le lien entre la distribution de charge donnée par (2.50) et le potentiel qu'elle génère donné par (2.50), la distribution équivalente de charges réelles σ_{eq} qui génère le même potentiel induit (3.24) que la sphère diélectrique de rayon a et de permittivité ε_2 , est donnée par :

$$\sigma_{eq} = \sum_{i+j+k=n} (-1)^n \varepsilon_1 D_{i,j,k} \frac{\partial^n \delta}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \quad (3.29)$$

$$= -(-1)^n \frac{4\pi\varepsilon_1 K^{(n)} a^{2n+1}}{(2n+1)!!} \sum_{i+j+k=n} C_{i,j,k} \frac{\partial^n \delta}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \quad (3.30)$$

L'injection de (3.29) dans (3.1), permet d'obtenir l'expression de la force DEP appliquée sur le multipôle d'ordre n :

$$\bar{F}_n = -\frac{4\pi\varepsilon_1 K^{(n)} a^{2n+1}}{(2n+1)!!} \int_{volume} \bar{E} \sum_{i+j+k=n} C_{i,j,k} \frac{(-1)^n \partial^n \delta}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} dv \quad (3.31)$$

En utilisant la dérivation au sens des distributions, l'expression (3.31) peut être simplifiée, et donne en utilisant l'expression (3.23) :

$$\bar{F}_n = -\frac{4\pi\varepsilon_1 K^{(n)} a^{2n+1}}{(2n+1)!!} \sum_{i+j+k=n} \frac{1}{i!j!k!} \left[\frac{\partial^n U_{n,ext}}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \frac{\partial^n \bar{E}}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \right]_{\bar{r}=0} \quad (3.32)$$

En sachant que $\left[\frac{\partial^{n'} U_{n,ext}}{\partial x^{i'} \partial y^{j'} \partial z^{k'}} \right]_{\bar{r}=0}$ doit tendre vers 0 à l'origine pour les valeurs de n' telles que $n' = i' + j' + k' \neq n$, le terme $U_{n,ext}$ dans (3.33) peut tout simplement être remplacé par U_{ext} , et on a :

$$\bar{F}_n = -\frac{4\pi\varepsilon_1 K^{(n)} a^{2n+1}}{(2n+1)!!} \sum_{i+j+k=n} \frac{1}{i!j!k!} \left[\frac{\partial^n U_{ext}}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \frac{\partial^n \bar{E}}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \right]_{\bar{r}=0} \quad (3.33)$$

La force totale est obtenue en sommant les ordres élémentaires $\bar{F}_n$;

$$\bar{F}_{total} = \sum_{n=1}^{\infty} \bar{F}_n \quad (3.34)$$

Il est à noter que, si d'un point de vue théorique, cette somme doit aller de $n = 1$ à l'infini, en pratique seuls les quelques premiers termes représentent des quantités significatives.

Représentation tensorielle L'expression (3.33) peut être réécrite en version tensorielle en utilisant [Bird 1987] :

$$[(\nabla)^n U[\cdot]^n (\nabla) U] = n! \sum_{i+j+k=n} \frac{1}{i!j!k!} \left(\frac{\partial^n U}{\partial x^i \partial y^j \partial z^k} \right)^2 \quad (3.35)$$

Ce qui permet finalement d'écrire $\overline{F}_{totale}$ sous la forme :

$$\overline{F}_n = \frac{1}{(n-1)!} K^{(n)}(\nabla)^{n-1} \overline{E}[\cdot]^n (\nabla)^n \overline{E} \quad (3.36)$$

Cette expression s'écrit bien :

$$\overline{F}_n = \frac{1}{n!} \overline{\overline{p}}^{\overline{\cdot}^n} [\cdot]^n (\nabla)^n \overline{E} \quad (3.37)$$

où

$$\overline{\overline{p}}^{\overline{\cdot}^n} = \frac{4\pi\epsilon_1 R^{2n+1} n}{(2n-1)!!} K^{(n)}(\nabla)^{n-1} \overline{E} \quad (3.38)$$

est le tenseur des moments multipolaires d'ordre n .

On écrit l'expression explicite de la force totale exercée sur une particule sphérique avec les premiers termes du développement :

$$\begin{aligned} \overline{F}_{totale} = 2\pi\epsilon_1 \nabla K^{(1)} R^3 [\overline{E} \cdot \overline{E}] + \frac{K^{(2)} R^5}{3} [\nabla \overline{E} : \nabla \overline{E}] \\ + \frac{K^{(3)} R^7}{30} [\nabla \nabla \overline{E} : \nabla \nabla \overline{E}] + \dots \end{aligned} \quad (3.39)$$

Notons que le premier terme de ce développement représente bien la force DEP conventionnelle exercée sur le dipôle. Les termes d'ordres supérieurs (quadrupole, octupole, ...) sont proportionnels aux dérivées spatiales du champ extérieur et des puissances du rayon a de la particule sphérique.

En se basant sur ces développements, la généralisation pour le calcul de la force pour des formes quelconque nécessite l'utilisation d'approches numériques et peut être menée selon la méthode proposée dans [Ogbi 2012] et décrite dans la section 2.2 du Chapitre 2.

3.1.6 Calcul de la force utilisant le développement en harmoniques sphériques

Les développements multipolaires en harmoniques sphériques introduits dans le chapitre précédent peuvent également être exploitées pour calculer la force électrique exercée sur une particule sphérique de rayon a par le champ extérieur $\overline{E}$. En particulier le potentiel appliqué U_{ext} peut s'écrire aussi :

$$U_{ext} = \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^n U_{n,m}^c A_{n,m}^c + A_{n,m}^s U_{n,m}^s \quad (3.40)$$

avec

$$U_{n,m}^c = r^n P_n^m(\cos \theta) \cos(m\Phi) \quad (3.41)$$

$$U_{n,m}^s = r^n P_n^m(\cos \theta) \sin(m\Phi) \quad (3.42)$$

De même la charge totale induite sur la surface de la particule peut s'écrire pour une particule sphérique de rayon a comme [Jones 1985] :

$$\sigma_t = \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^n \varepsilon_0 K^{(n)} a^{n-1} P_n^m(\cos \theta) [A_{n,m}^c \cos m\varphi + A_{n,m}^s \sin m\varphi] \quad (3.43)$$

où $K^{(n)}$ représente le facteur de Clausius-Mossotti donné par (2.55) Le développement de la force peut alors en être déduit, en utilisant les résultats de dérivations des termes harmoniques sphériques :

$$\frac{U_{n,m}^c}{\partial x} = \frac{(n+m)(n+m-1)}{2} U_{n-1,m-1}^c - \frac{1}{2} U_{n-1,m+1}^c \quad (3.44)$$

$$\frac{U_{n,m}^c}{\partial y} = -\frac{(n+m)(n+m-1)}{2} U_{n-1,m-1}^s - \frac{1}{2} U_{n-1,m+1}^s \quad (3.45)$$

$$\frac{U_{n,m}^c}{\partial z} = (n+m) U_{n-1,m}^c \quad (3.46)$$

$$\frac{U_{n,m}^s}{\partial x} = \frac{(n+m)(n+m-1)}{2} U_{n-1,m-1}^s - \frac{1}{2} U_{n-1,m+1}^s \quad (3.47)$$

$$\frac{U_{n,m}^s}{\partial y} = -\frac{(n+m)(n+m-1)}{2} U_{n-1,m-1}^c + \frac{1}{2} U_{n-1,m+1}^c \quad (3.48)$$

$$\frac{U_{n,m}^s}{\partial z} = (n+m) U_{n-1,m}^s \quad (3.49)$$

On obtient ainsi une expression pour les composantes E_i , $i = 1, 2, 3$, du champ :

$$E_i = \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^n [X_{n,m}^c r^n P_n^m(\cos \theta) \cos(m\varphi) + X_{n,m}^s r^n P_n^m(\cos \theta) \sin(m\varphi)] \quad (3.50)$$

où $X_{n,m}^c$ et $X_{n,m}^s$ sont des constantes reliées à $A_{n,m}^c$ et $A_{n,m}^s$ par (3.44) – (3.49). En utilisant (3.50) et (3.1), on déduit l'expression de la force :

$$F = - \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^n K^{(n)} a^{2n-1} [G_{n,m}^c A_{n,m}^c X_{n,m}^c + G_{n,m}^s A_{n,m}^s X_{n,m}^s] \quad (3.51)$$

avec

$$G_{n,m}^c = \begin{cases} 2\pi a^2 \frac{2(n+m)!}{(n-m)!(2n+1)} & (m=0) \\ \pi a^2 \frac{2(n+m)!}{(n-m)!(2n+1)} & (m \neq 0) \end{cases} \quad (3.52)$$

et

$$G_{n,m}^s = \begin{cases} 0 & (m=0) \\ \pi a^2 \frac{2(n+m)!}{(n-m)!(2n+1)} & (m \neq 0) \end{cases} \quad (3.53)$$

L'utilisation de ce formalisme multipolaire par harmoniques sphériques facilite dans certaines situations la détermination de la force par un calcul numérique ou analytique. Masao et al. [Masao 1993] utilisent une approche basée sur un raisonnement similaire pour déduire une expression analytique de la force. Dans leur approche la structure d'électrode quadrupolaire permettant d'obtenir une lévitation passive par DEP est approchée par quatre charges ponctuelles. Ils mettent en particulier en évidence que le modèle basé sur la théorie du dipôle classique ne permet pas de décrire correctement l'interaction entre la particule placée sur l'axe central de cette structure d'électrodes et le champ électrique, et qu'il faut utiliser un développement multipolaire d'ordre supérieur. En adoptant une démarche similaire à celle de Masao et al., Schnelle et al. ont aussi étudié des micro-systèmes avec une double structure d'électrodes quadrupolaire [Schnelle 1999b].

3.2 Particules ou milieu de suspension présentant des pertes

Considérons une particule sphérique de permittivité ε_2 et de conductivité σ_2 suspendue dans un milieu fluide de permittivité ε_1 et de conductivité σ_1 , et soumise à un champ extérieur alternatif à variation temporelle sinusoïdale :

$$\overline{E}(t) = \text{Re}(\underline{E}) \quad (3.54)$$

où

$$\underline{E} = E_k e^{i\omega t} \hat{x}_k \quad (3.55)$$

avec $i^2 = -1$, et où ω la pulsation du champ électrique appliqué est liée à la fréquence par $\omega = 2\pi f$. Les résultats de calcul de force et de couple présentés précédemment à partir de problèmes aux limites s'adaptent aux cas avec perte en introduisant les permittivités complexes définies par $\underline{\varepsilon}_r = \varepsilon_r - i \frac{\sigma_r}{\omega}$ pour les différents milieux présentant des pertes. Ces permittivités complexes se substitueront aux permittivités réelles dans les expressions obtenues pour le cas de diélectriques sans pertes.

Dans la suite, nous développerons les expressions de la force et du couple, pour des milieux à pertes, en utilisant d'abord la méthode des moments effectifs puis celle du tenseur de contraintes de Maxwell. Ces deux méthodes seront ensuite appliquées à deux situations réalistes.

3.2.1 Calcul de la force et du couple par les moments effectifs

Les expressions de la force et du couple présentées précédemment représentent des valeurs instantanées. Sous la forme temporelle ces quantités s'écrivent :

$$\overline{F}_{DEP}(t) = \text{Re}[p_{\text{eff}} e^{i\omega t}] \cdot \nabla \text{Re}[\underline{E} e^{i\omega t}] \quad (3.56)$$

$$\overline{T}(t) = \text{Re}[p_{\text{eff}} e^{i\omega t}] \times \text{Re}[\underline{E} e^{i\omega t}] \quad (3.57)$$

Les moyennes temporelles de la force et du couple s'écrivent en fonction du moment effectif complexe comme ¹ :

$$\langle \overline{F}(t) \rangle = \frac{1}{2} \text{Re}[\underline{\overline{p}}_{\text{eff}} \cdot \underline{\overline{E}}^*] \quad (3.58)$$

$$\langle \overline{T}(t) \rangle = \frac{1}{2} \text{Re}[\underline{\overline{p}}_{\text{eff}} \times \underline{\overline{E}}^*] \quad (3.59)$$

On obtient ainsi la moyenne temporelle pour la force DEP classique :

$$\langle \overline{F}_{DEP}(t) \rangle = 2\pi\epsilon_1 R^3 \text{Re}[\underline{K}(\omega)] \nabla E_{rms}^2 \quad (3.60)$$

où E_{rms} est la valeur efficace du champ alternatif appliqué et $\underline{K}(\omega)$ est le facteur de Clausius-Mossotti. On obtient en utilisant (3.57) le couple exercé par un champ tournant :

$$\langle \overline{T}(t) \rangle = -4\pi\epsilon_1 R^3 \text{Im}[\underline{K}(\omega)] E_0^2 \hat{z} \quad (3.61)$$

avec

$$\underline{\overline{E}} = E_0(\hat{x} - i\hat{y}) \quad (3.62)$$

La figure (3.2) représente la variation des parties réelle et imaginaire du facteur de Clausius-Mossotti intervenant dans (3.60) et (3.62) pour un cas donné de particule diélectrique dans son milieu de suspension.

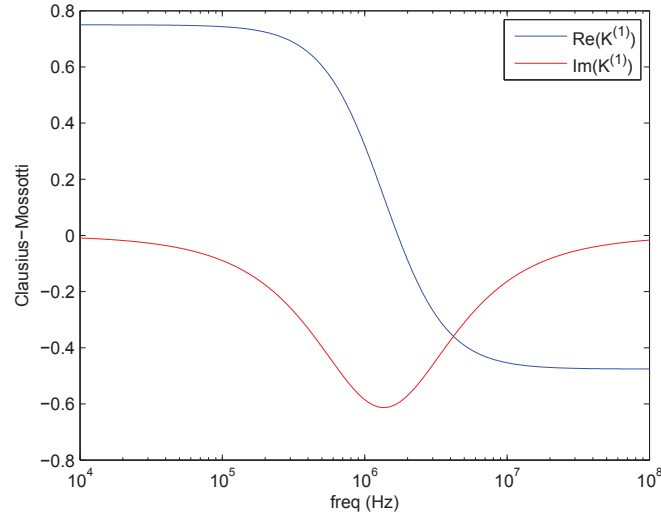


FIGURE 3.2 – variation de la partie réelle et imaginaire du facteur de Clausius-Mossotti pour une particule sphérique immergée dans un milieu de suspension. Les paramètres électriques des deux milieux sont : $\sigma_m = 0.001$, $\epsilon_m = 77.8\epsilon_0$, $\sigma_p = .01$, $\epsilon_p = 2.55\epsilon_0$.

1. $\langle \text{Re}(\overline{A}e^{i\omega t}) \text{Re}(\overline{B}e^{i\omega t}) \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \text{Re}(\overline{A}e^{i\omega t}) \text{Re}(\overline{B}e^{i\omega t}) d(\omega t) = \frac{1}{2} \text{Re}(\overline{A} \times \overline{B}^*)$

La moyenne temporelle de la force exercée sur le multipôle linéaires d'ordre n s'écrit :

$$\langle F_z^{(n)} \rangle = \frac{2\pi\epsilon_1 R^{2n+1}}{n!(n-1)!} \text{Re}[K^{(n)}] \frac{\partial}{\partial z} \left[\frac{\partial^{n-1} E_{z,rms}}{\partial z^{n-1}} \right]^2. \quad (3.63)$$

La moyenne temporelle pour la force exercé sur le multipôle général s'écrit sous la même forme, et elle est donnée par :

$$\langle F^{(n)} \rangle = \frac{1}{2} \text{Re} \left[\frac{\left[\frac{\partial}{\partial \underline{p}} \right]^n [\cdot]^n (\nabla)^n \underline{E}^*}{n!} \right]. \quad (3.64)$$

De même pour le couple on a :

$$\langle T^{(n)} \rangle = \frac{1}{2} \text{Re} \left[\frac{1}{(n-1)!} \left[\frac{\partial}{\partial \underline{p}} \right]^n [\cdot]^n (\nabla)^{n-1} \right] \times \underline{E}^*. \quad (3.65)$$

3.2.1.1 Formulations scalaires explicites

Les expressions tensorielles définies dans (3.64) et (3.65) peuvent s'écrire sous une forme explicite. En particulier pour une particule sphérique de rayon R soumise à un champ extérieur $\underline{E}$ on a :

$$\langle F^{(n)} \rangle = \frac{2\pi R^{2n+1}}{n!(2n-1)!!} \text{Re}(\underline{\epsilon}_1) \text{Re}(K^{(n)}) \partial_k (\partial_{i_1, i_2, \dots, i_{n-1}} E_j)^2 \hat{x}_k \quad (3.66)$$

où la notation de la sommation d'Einstein a été adoptée. Ce qui donne bien à l'ordre 1 la force DEP classique :

$$\langle F^{(1)} \rangle = 2\pi R^3 \text{Re}(\underline{\epsilon}_1) \text{Re}(K^{(1)}) \nabla(E^2) \quad (3.67)$$

le deuxième terme de la force représentant la composante quadrupolaire ($n=2$) s'écrit :

$$\langle F^{(2)} \rangle = \frac{\pi R^5}{3} \text{Re}(\underline{\epsilon}_1) \text{Re}(K^{(2)}) \sum_{i,j,k} \partial_k (\partial_i E_j)^2 \hat{x}_k \quad (3.68)$$

Notons qu'on utilise dans ces expressions $\text{Re}(\underline{\epsilon}_1)$. La variation typique de $\text{Re}(K^{(n)})$ en fonction des fréquences pour $n = 1, 2$, et 3 avec des constantes diélectriques données est représentée dans la figure 3.3.

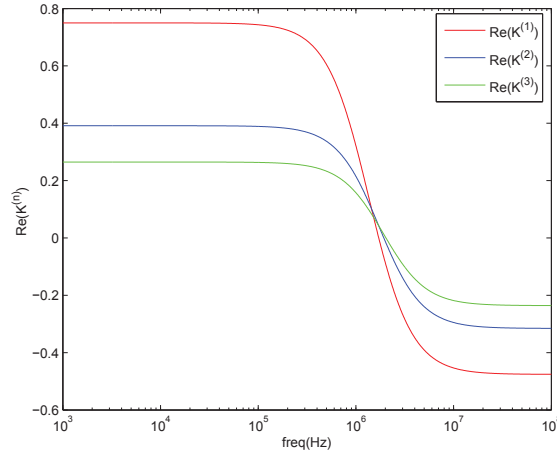


FIGURE 3.3 – Variation en fonction de la fréquence de la partie réelle des premiers ordres du facteur de Clausius-Mossotti généralisé $K^{(n)}$ pour les mêmes paramètres électriques que la figure 3.2.

De même pour le couple, l'expression scalaire correspondante à (3.65) s'écrit :

$$\langle T^{(n)} \rangle = \frac{2\pi R^{2n+1}}{(n-1)!(2n-1)!!} \text{Re}(\underline{\varepsilon}_1) \text{Im}(K^{(n)}) \text{Im}(\varepsilon_{ijk} \partial_{i_1, i_2, \dots, i_{n-1}} E_i^* \partial_{i_1, i_2, \dots, i_{n-1}} E_j \hat{x}_k) \quad (3.69)$$

où ε_{ijk} est le tenseur anti-symétrique qui définit le produit vectoriel entre deux vecteurs². La variation typique de $\text{Im}(K^{(n)})$ en fonction des fréquences pour $n = 1, 2$, et 3 avec des constantes diélectriques données est représentée dans la figure 3.4. En utilisant cette expression à l'ordre 1 pour le cas d'un champ tournant défini par : $E_x = E e^{i\omega t}$, $E_y = E e^{i\omega t + \pi/2}$ et $E_z = 0$, on a :

$$\langle T^{(1)} \rangle = 4\pi R^3 \text{Re}(\underline{\varepsilon}_1) \text{Im}(K^{(1)}) E^2 \hat{z} \quad (3.70)$$

qui correspond bien à l'expression (3.61) trouvée précédemment.

A l'ordre quadrupolaire ($n = 2$), l'expression (3.69) donne :

$$\langle T^{(2)} \rangle = \frac{2\pi R^5}{3} \text{Re}(\underline{\varepsilon}_1) \text{Im}(K^{(2)}) \text{Im} \left(\sum_{i,j,k,l} \varepsilon_{ijk} (\partial_l E_i^*) (\partial_l E_j) \hat{x}_k \right) \quad (3.71)$$

Notons que la sommation pour le couple à l'ordre quadrupolaire contient quatre indices i, j, k et l , contrairement à celle de la force.

2. $\overline{A} \times \overline{B} = \varepsilon_{ijk} A_i B_j \hat{x}_k$

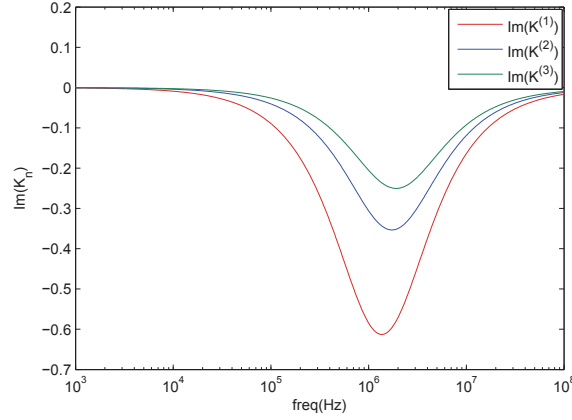


FIGURE 3.4 – Variation en fonction de la fréquence de la partie imaginaire des premiers ordres du facteur de Clausius-Mossotti généralisé $K^{(n)}$ pour les mêmes paramètres électriques que la figure 3.2.

Les expressions multipolaires (3.64) et (3.65) permettent de déduire d'une part que ces quantités décroissent rapidement avec la distance (r^{-3} pour le terme dipolaire contre r^{-5} pour l'ordre quadrupolaire par exemple), et, d'autre part, que leur importance relative augmente avec la non-uniformité du champ. Ces mêmes remarques sont également valables pour les expressions de la force et du couple, puisqu'elles sont basées sur la méthode des moments multipolaires effectifs.

3.2.1.2 Application au champ à ondes progressives

Dans ce paragraphe nous nous intéressons à l'application de la théorie des moments multipolaires pour calculer les forces et les couples exercés sur une particule par un champ à ondes progressives [Hagedorn 1992, Green 2002]. Considérons le cas d'un champ à onde progressive se propageant de gauche à droite :

$$\underline{E}(x, y) = E_0(j\hat{x} + \hat{y})e^{-jkx - ky} \quad (3.72)$$

En utilisant (3.64) et (3.72), on détermine la moyenne temporelle de la force DEP. Le résultat pour les composantes suivant les directions x et y sont :

$$\langle F_x \rangle = -4\pi\epsilon_1 R^3 k E^2 e^{(-2ky)} \left[\text{Im}[\underline{K}^{(1)}] + \frac{2k^2 R^2}{3} \text{Im}[\underline{K}^{(2)}] + \dots \right] \quad (3.73)$$

et

$$\langle F_y \rangle = -4\pi\epsilon_1 R^3 E^2 e^{(-2ky)} \left[\text{Im}[\underline{K}^{(1)}] + \frac{4k^2 R^2}{3} \text{Im}[\underline{K}^{(2)}] + \dots \right] \quad (3.74)$$

La composante suivant x dépend de la partie imaginaire des coefficients de polarisation complexes et propulse la particule dans la direction $+x$ ou $-x$ selon les valeurs de $\text{Im}[K^{(1)}]$ et $\text{Im}[K^{(2)}]$.

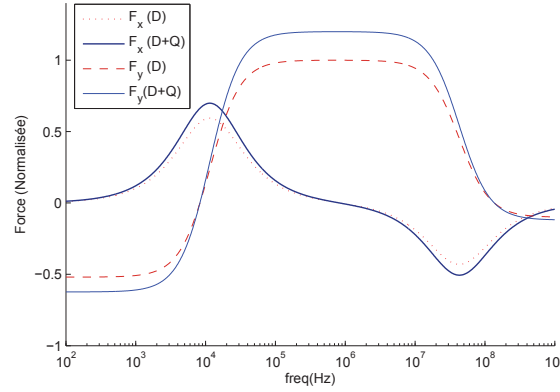


FIGURE 3.5 – Dépendance en fréquence de la moyenne temporelle suivant x et y des forces $\langle F_x \rangle$ et $\langle F_y \rangle$ sur une particule sphérique dans un champ électrique d'ondes progressives harmonique pour l'ordre dipolaire (auquel fait référence la lettre D) et l'ordre quadrupolaire (auquel fait référence la lettre Q)

De façon similaire on obtient l'expression pour le couple à l'ordre quadrupolaire :

$$\langle T_z \rangle = -4\pi\epsilon_1 R^3 E_0^2 \times e^{(-2ky)} \left[\text{Im}[\underline{K}^{(1)}] + \frac{4k^2 R^2}{3} \text{Im}[\underline{K}^{(2)}] + \dots \right] \quad (3.75)$$

La figure (3.6) montre la dépendance en fréquence du couple exercé sur une particule par un champ à ondes progressives. Notons en comparant avec la figure que la (fig. 3.5) que la correction quadrupolaire a une influence deux fois plus importante pour le couple de rotation que pour la force DEP.

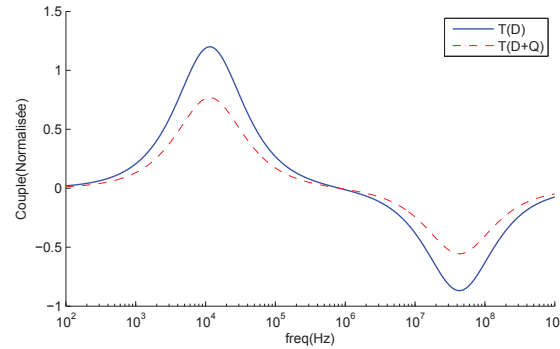


FIGURE 3.6 – Dépendance en fréquence de la moyenne temporelle du couple $\langle T_z \rangle$ sur une particule sphérique dans un champ électrique d'ondes progressives harmonique pour l'ordre dipolaire et l'ordre quadrupolaire.

Les résultats présentés ici correspondent à une particule sphérique de rayon $R = 10^{-5}\text{m}$ et les paramètres électriques sont ceux du tableau (Tab. 3.2.3) de la sous-section 3.2.3.

3.2.1.3 Cas de particule multicouches

Pour le cas de base à une couche (fig. 3.7) le modèle de permittivité équivalente donne [Fuhr 1986] :

$$\underline{\varepsilon}'_2 = \left\{ \frac{a^3 + 2 \left(\frac{\underline{\varepsilon}_3 - \underline{\varepsilon}_2}{\underline{\varepsilon}_3 + 2\underline{\varepsilon}_2} \right)}{a^3 - \left(\frac{\underline{\varepsilon}_3 - \underline{\varepsilon}_2}{\underline{\varepsilon}_3 + 2\underline{\varepsilon}_2} \right)} \right\} \quad (3.76)$$

avec $a = R_1/R_2$. La procédure d'"homogénéisation" décrite au chapitre 2 permet de remonter à une permittivité équivalente pour une structure concentrique à $N + 1$ couches selon :

$$\left(\frac{\underline{\varepsilon}'_{i+1} - \underline{\varepsilon}'_i}{\underline{\varepsilon}'_{i+1} + 2\underline{\varepsilon}'_i} \right) = \left(\frac{R_i}{R_{i-1}} \right)^3 \left(\frac{\underline{\varepsilon}'_i - \underline{\varepsilon}_{i-1}}{\underline{\varepsilon}'_i + 2\underline{\varepsilon}_{i-1}} \right), \quad 1 \leq i \leq N. \quad (3.77)$$

La permittivité équivalente, insérée dans le facteur de Clausius-Mossotti généralisé dans les équations (3.17),(3.66) et (3.69), permet de calculer la force DEP et le couple exercés sur une particule multicouche.

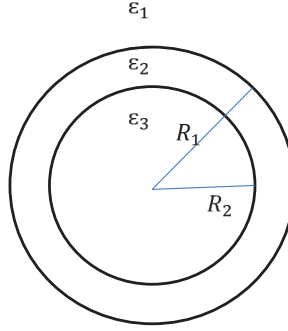


FIGURE 3.7 – Une particule diélectrique à une couche immergée dans un milieu diélectrique.

La méthode classique d'"homogénéisation"³ convient parfaitement lorsqu'on en s'intéresse à l'estimation de la force et du couple en utilisant le modèle des moments effectifs classiques, car elle est fondée sur l'approximation dipolaire. Cependant, cette approximation est inadaptée à l'estimation des termes d'ordre supérieur dans le modèle multipolaire, et se révèle donc inappropriée dans les situations où ces termes sont significatifs, en particulier lorsque la non-uniformité du champ est importante. Pour résoudre ce problème, l'approche proposée est celle des permittivités équivalentes multipolaires étudiées (2.63) dans le chapitre précédent, qui utilise des permittivités complexes (i.e avec les substitutions $\varepsilon_r \rightarrow \underline{\varepsilon}_r$). Avec cette approche la permittivité équivalente de la structure à 1 couche est donnée par :

3. dite méthode "smeared-out"

$$(\varepsilon_2)'_n = \varepsilon_2 \frac{a^{(2n+1)} + (n+1)K_{<}^{(n)}}{a^{(2n+1)} - nK_{<}^{(n)}} \quad (3.78)$$

où

$$K_{<}^{(n)} = \frac{\varepsilon_3 - \varepsilon_2}{n\varepsilon_3 + (n+1)\varepsilon_2} \quad (3.79)$$

Ceci permet de corriger les facteurs de polarisations multipolaires, et on obtient :

$$K_{eq}'^{(n)} = \frac{(\varepsilon_2)'_n - \varepsilon_1}{n(\varepsilon_2)'_n + (n+1)\varepsilon_1} \quad (3.80)$$

Le calcul de ces $K_{eq}'^{(n)}$ pour les premiers ordres est présenté dans la figure 3.8. Pour l'ordre dipolaire ($n = 1$), (3.80) donne le facteur de Clausius-Mossotti pour le modèle de permittivité équivalente classique. En utilisant les multipôles linéaires comme modèle pour le cas d'une structure multicouche, la force multipolaire est donnée par :

$$\langle F_z^{(n)} \rangle = \frac{2\pi\varepsilon_1 R^{2n+1}}{n!(n-1)!} \text{Re}[K_{eq}'^{(n)}] \frac{\partial}{\partial z} \left[\frac{\partial^{n-1} E_{z,rms}}{\partial z^{n-1}} \right]^2 \quad (3.81)$$

De même le couple multipolaire pour ce cas est donné par :

$$\langle T^{(n)} \rangle = \frac{2\pi R^{2n+1}}{(n-1)!(2n-1)!!} \text{Re}(\varepsilon_1) \text{Im}(K'^{(n)}) \text{Im}(\varepsilon_{ijk} \partial_{i_1, i_2, i_{n-1}} E_i^* \partial_{i_1, i_2, i_{n-1}} E_j \hat{x}_k) \quad (3.82)$$

3.2.2 Tenseur de contraintes de Maxwell

L'approche développée par Sauer et Schlögel [Nicolini 1998] pour le calcul de la force et du couple se base sur le tenseur des contraintes de Maxwell défini par [Stratton 1941] :

$$\overline{\overline{M}} = \varepsilon(\overline{E}\overline{E} - \frac{1}{2}E^2\overline{U}) \quad (3.83)$$

représenté par la matrice :

$$\overline{\overline{M}} = \begin{pmatrix} M_{xx} & M_{xy} & M_{xz} \\ M_{yx} & M_{yy} & M_{yz} \\ M_{zx} & M_{zy} & M_{zz} \end{pmatrix} \quad (3.84)$$

avec

$$\overline{\overline{M}}_{ij} = \varepsilon_1 \overline{E}_i^* \overline{E}_j - \frac{1}{2} \varepsilon_1 ||E||^2 \delta_{ij}, \quad i, j \in x, y, z \quad (3.85)$$

où δ_{ij} est le symbole de Kronecker.

Les expressions de la force et du couple sont respectivement obtenues par intégration de la composante normale du tenseur sur la surface de la particule sphérique, et par intégration de son produit vectoriel avec le vecteur radial [Sauer 1985] :

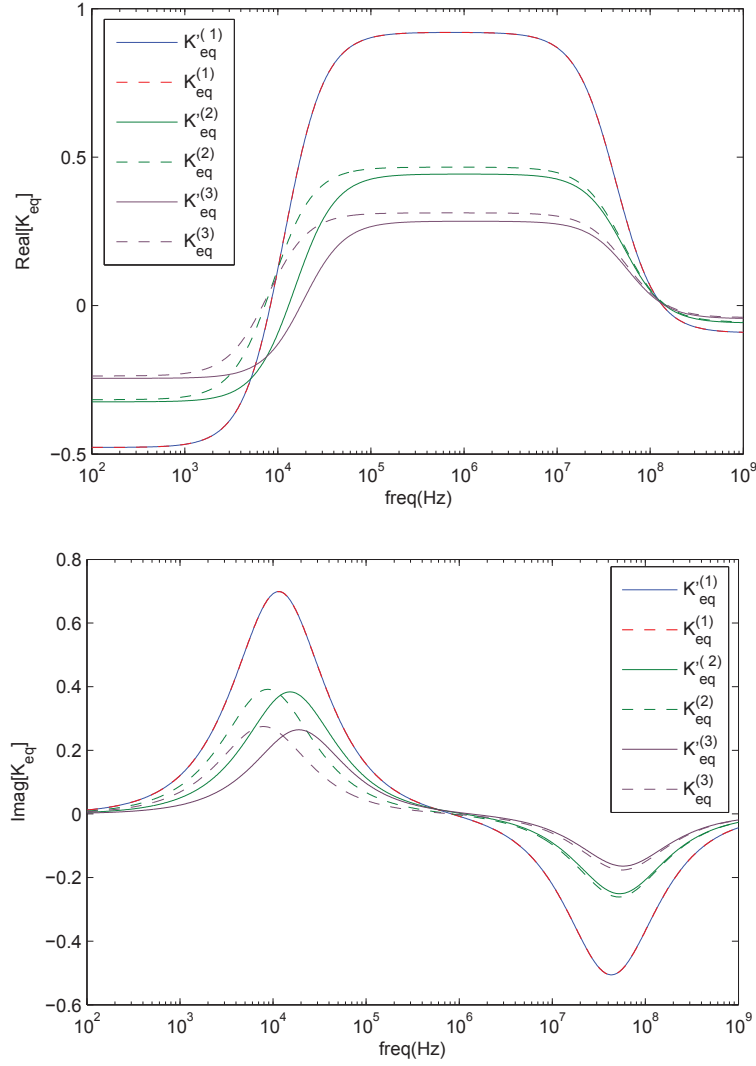


FIGURE 3.8 – Parties réelles et imaginaire des facteurs de polarisation généralisés correspondant aux cas multipolaire-multicouche. $R_1 = 2.01 \times 10^{-6}\text{m}$, $R_2 = 2.0 \times 10^{-6}\text{m}$, $R_3 = 0.5 \times 10^{-6}\text{m}$, $\varepsilon_1 = 78.5\varepsilon_0$, $\varepsilon_2 = 10\varepsilon_0$, $\varepsilon_3 = 60\varepsilon_0$, $\varepsilon_4 = 30\varepsilon_0$, $\sigma_1 = 10^{-4}\text{Sm}^{-1}$, $\sigma_2 = 10^{-8}\text{Sm}^{-1}$, $\sigma_3 = 0.5\text{Sm}^{-1}$.

$$\bar{F}(t) = \int (\bar{\bar{M}} \cdot \bar{n}) dA \quad (3.86)$$

$$\bar{T}(t) = \int r \bar{n} \times (\bar{\bar{M}} \cdot \bar{n}) dA \quad (3.87)$$

où $\bar{n}$ est la normale sortante à la surface et r est le vecteur position.

Le tenseur de Maxwell défini par (3.85) peut être décomposé selon :

$$\overline{\overline{M}} = \underbrace{\frac{1}{4}Re(\underline{\varepsilon}) \left((\overline{E}\overline{E}^* + \overline{E}^*\overline{E}) - \|\overline{E}\|^2 \overline{\overline{U}} \right)}_{\overline{\overline{M}}_1} + \underbrace{\frac{1}{4}Re(\underline{\varepsilon}) \left(\overline{E}\overline{E}^* - \frac{1}{2}(\overline{E} \cdot \overline{E} + \overline{E}^* \cdot \overline{E}^*) \overline{\overline{U}} \right)}_{\overline{\overline{M}}_2} \quad (3.88)$$

où $\overline{\overline{U}}$ est le tenseur unité d'ordre 2. Cette décomposition est utilisée pour calculer la moyenne temporelle, car le terme $\overline{\overline{M}}_2$ est un terme instantané qui s'annule. La force DEP et le couple sont obtenus par :

$$\langle \overline{F} \rangle = \int \overline{\overline{M}}_1 \cdot \overline{n} dA \quad (3.89)$$

$$= \frac{1}{4}Re(\underline{\varepsilon}_1) \int \left((\overline{E}\overline{E}^* + \overline{E}^*\overline{E}) - \|\overline{E}\|^2 \overline{\overline{U}} \right) \cdot \overline{n} dA \quad (3.90)$$

et

$$\langle \overline{T} \rangle = \int r \overline{n} \times (\overline{\overline{M}}_2 \cdot \overline{n}) dA \quad (3.91)$$

$$= \frac{1}{4}Re(\underline{\varepsilon}_1) \int r \overline{n} \times \left(\left(\overline{E}\overline{E}^* - \frac{1}{2}(\overline{E} \cdot \overline{E} + \overline{E}^* \cdot \overline{E}^*) \overline{\overline{U}} \right) \cdot \overline{n} \right) dA \quad (3.92)$$

Cette approche sera utilisée dans la suite en parallèle avec l'approche des moments effectifs pour calculer numériquement les forces et couples exercés sur la particule dans des structures de micro-systèmes "réaliste".

3.2.3 Application à une configuration pointe-plan

La configuration pointe-plan est classiquement utilisée pour créer un champ électrique non uniforme [Jones 1995]. En pratique, cette configuration correspond à une électrode plane circulaire au-dessus de laquelle est placée une pointe (fig. 3.2.3). Cette configuration a une symétrie de révolution par rapport à l'axe de la pointe. De ce fait, le domaine d'étude se ramène au demi-plan méridien. La particule de symétrie cylindrique dans ce micro-système est placée le long de l'axe de la pointe afin de conserver la symétrie axiale 2D.

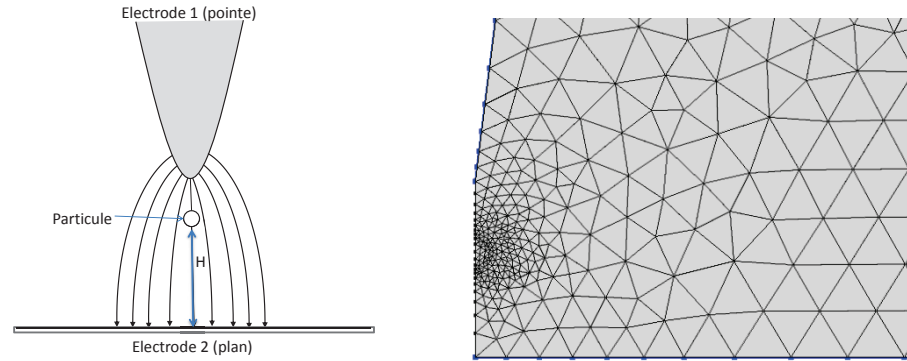


FIGURE 3.9 – Représentation schématique de la configuration pointe-plan (gauche), et image du maillage utilisé pour les calculs de champ (droite).

La particule est plongée dans une solution aqueuse de type alcool sucré. La distance entre les deux électrodes vaut $100\mu m$. Les calculs sont effectués pour plusieurs positions de la particule le long de l'axe de symétrie (avec une distance H de son centre à l'électrode plane), et la fréquence du champ électrique appliqué est comprise entre 10Hz et 100MHz. Les différentes propriétés électriques sont résumées dans le tableau 3.2.3.

Matériau	Permittivité électrique ε (F/m)	Conductivité électrique σ (S/m)
Solution aqueuse	$77.8\varepsilon_0$	10^{-3}
Particule	$2.55\varepsilon_0$	10^{-2}

TABLE 3.1 – Tableau des paramètres électriques de la particule (de rayon $R = 10^{-5}m$) et du milieu de suspension.

La figure 3.10 présente les résultats de calcul de la force par le tenseur de Maxwell pour différentes valeurs de H , et pour les fréquences 1KHz, 1MHz et 100MHz. L'analyse de ces résultats met en évidence les points suivants :

- D'une part la force exercée sur la particule par le champ non-uniforme $\overline{E}$ pour les trois fréquences varie peu dans la zone située entre l'électrode plan et le centre du système (i.e pour approximativement $H = 50.10^{-6}m$).
- D'autre part, aux basses fréquences, la force DEP appliquée sur la particule est négative, ce qui provoque un mouvement de la particule dans la direction $-z$ (voir DEP négative, chapitre 1). Aux fréquences plus élevées (1MHz et plus), la force DEP est positive, provoquant le mouvement de la particule vers la direction $+z$ (voir DEP positive, chapitre 1). Bien évidemment, ces tendances sont liées au contraste des constantes électriques entre la particule et le milieu de suspension.

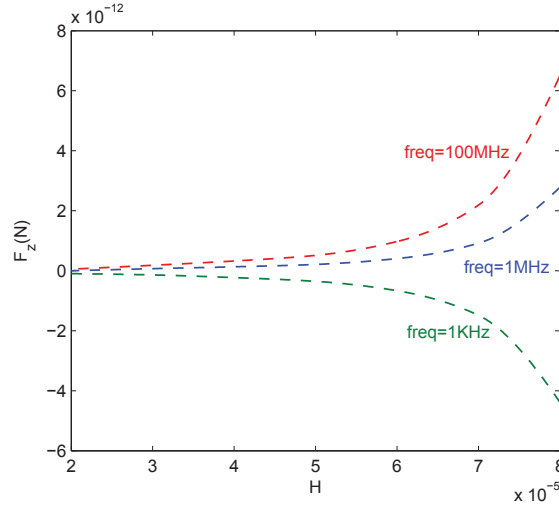


FIGURE 3.10 – Variation de la force DEP en fonction de la position H , pour les fréquences 1KHz, 1MHz et 100MHz

La dépendance en fréquence de la force exercée sur la particule calculée avec le tenseur de Maxwell pour différentes valeurs de positions H sur l'axe z sont données à la figure 3.11.

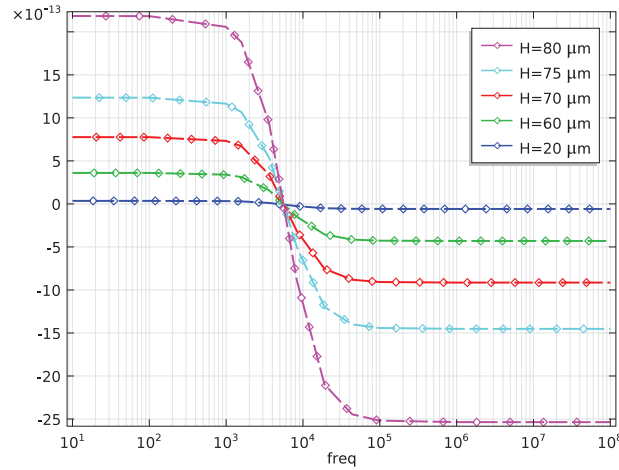


FIGURE 3.11 – Variation fréquentielle de la force pour différentes valeurs du paramètre position H sur l'axe z .

La figure 3.11 confirme que plus la particule est proche d'une zone de gradient de champ fort (en s'approchant de la pointe), plus l'intensité de la force exercée sur celle-ci augmente. Cette tendance est également confirmée lorsqu'on utilise la méthode des moments effectifs (fig. 3.12), en particulier avec les facteurs de polarisation de Clausius-Mossotti généralisés 3.1.2. On voit là un des avantages de la méthode des moments effectifs, car elle permet de prédire à priori l'évolution de la

force exercée sur la particule en fonction de la fréquence, des constantes électriques, et de la forme de la particule, puisqu'on connaît dans une certaine mesure le comportement des multipôles qui représentent sa polarisation. La méthode des moments multipolaires générale permet d'apporter des corrections à la force DEP classique (dipolaire), car elle prend en compte les moments d'ordres supérieurs 3.1.5. La figure 3.12 compare les résultats de calcul de la force DEP obtenue par le tenseur de Maxwell et par la méthode multipolaire (linéaire (3.63)) mise en oeuvre aux premiers ordres (1,2 et 3). L'avantage de l'approche utilisant le tenseur de Maxwell reste le fait qu'elle permet plus de précision que la méthode des moments effectifs classiques (dipolaire), surtout quand la non-uniformité du champ est importante.

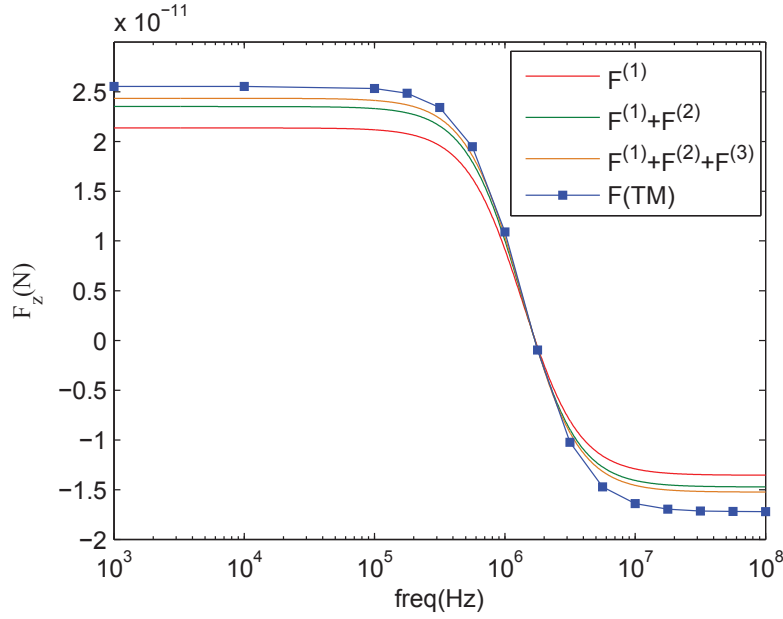


FIGURE 3.12 – Variation de la force DEP, appliquée sur une particule positionnée dans la région de gradients de champs élevés, $H = 80\mu m$ du plan, en fonction de la fréquence, par le tenseur de Maxwell ($F(TM)$) et le modèle multipolaire

On observe que le modèle dipolaire suit d'une manière appropriée les variations de la force diélectrophorétique calculée par le tenseur de Maxwell, mais sous-estime les valeurs de la force. La contribution des ordres quadrupolaire et octopolaire apporte des corrections qui tendent à minimiser l'écart entre les résultats issus des deux modèles.

3.2.4 Particule au centre d'un système quadrupolaire d'électrodes

On utilise classiquement des systèmes d'électrodes quadrupolaires pour la manipulation de particules diélectriques par diélectrophorèse et électrorotation [Holzel 1993, Hughes 1994]. Une forme particulière de ces systèmes d'électrodes quadrupolaires est la forme dite polynomiale, qui présente certains avantages pour la répartition du

champ produit, mis en évidence dans [Hughes 1994, Hughes 1998].

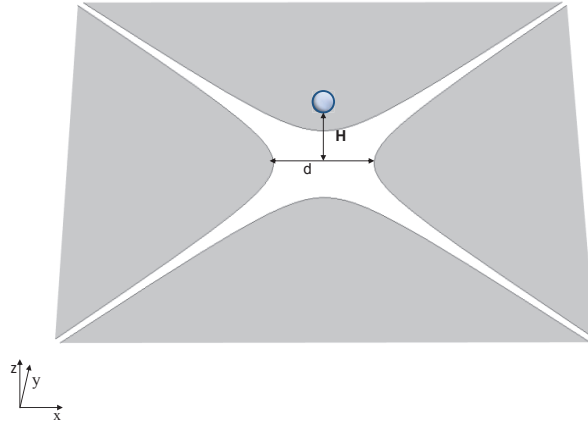


FIGURE 3.13 – Représentation schématique d'un système d'électrodes polynômiales, tel qu'il est utilisé pour l'électrorotation (ROT). La particule est mise en suspension au centre du microsystème sur l'axe z à une distance H du plan des électrodes. Les quatre électrodes en quadrature génèrent un champ tournant.

Les électrodes du microsystème (fig. 3.13) sont considérées comme étant d'épaisseur nulle. Une particule sphérique est placée au centre du microsystème. Notons que cette zone présente une situation de symétrie et que le champ y est homogène [Hughes 1999, Holzel 1993].

La géométrie des électrodes polynômiales dans le plan xy est défini par l'équation

$$||x^2 - y^2|| = d^2 \quad (3.93)$$

où $2d$ est la distance séparant les pointes de deux électrodes opposées. Pour générer un champ tournant, les quatre électrodes sont alimentées par quatre tensions sinusoïdales $V = V_0 \cos(\omega t + \varphi)$ avec $V_0 = 10V$, avec un déphasage de 90° entre deux électrodes adjacentes. Si le champ généré est homogène dans la partie centrale du microsystème, il ne l'est pas au voisinage des électrodes, ce qui nécessite de prendre en compte la répartition de la phase en dehors de la région centrale et nécessite l'utilisation d'une expression plus générale pour le champ électrique appliqué.

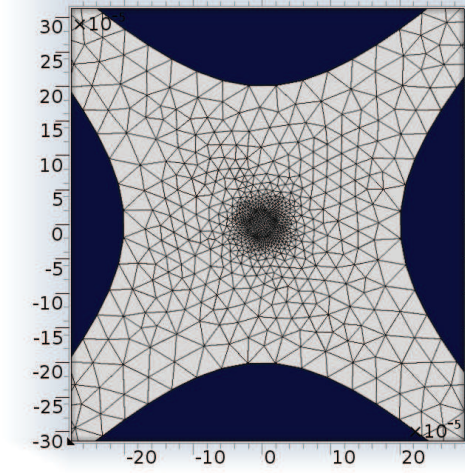


FIGURE 3.14 – Maillage du système au niveau du plan $H = 0$.

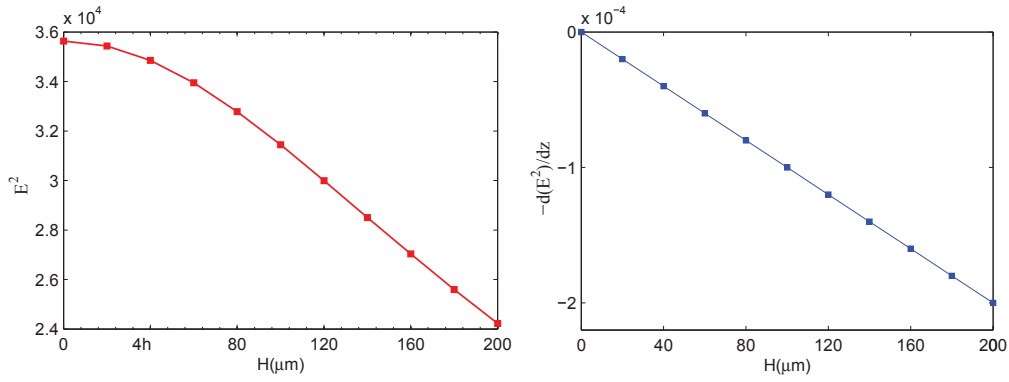


FIGURE 3.15 – Carré du champ électrique et son gradient le long de l'axe vertical dans la chambre en fonction de H . La fréquence est de 1 MHz.

Le champ électrique dans le microsystème est calculé numériquement en 3 dimensions, en utilisant la méthode des éléments finis [Com]. La figure 3.15 montre l'évolution du carré du champ électrique en fonction de H le long de l'axe central, ainsi que son gradient. La figure (3.16) donne la variation de la force en fonction de la fréquence calculée avec le modèle dipolaire (Dip) et avec le tenseur de Maxwell (TM). D'après ces résultats, on constate :

- Plus la particule est loin du plan des électrodes ($H = 140\mu\text{m}$), plus l'écart entre la force donnée par l'approximation dipolaire et la force donnée par le tenseur de Maxwell est faible. Ceci qui signifie que les termes multipolaires d'ordre supérieurs ont une influence négligeable sur la force calculée.
- Lorsque la cellule se trouve plus proche du plan des électrodes ($H = 50\mu\text{m}$) la force est surestimée par le modèle dipolaire. Ceci est dû aux ordres supérieurs qui sont implicitement pris en compte lorsqu'on utilise le tenseur des

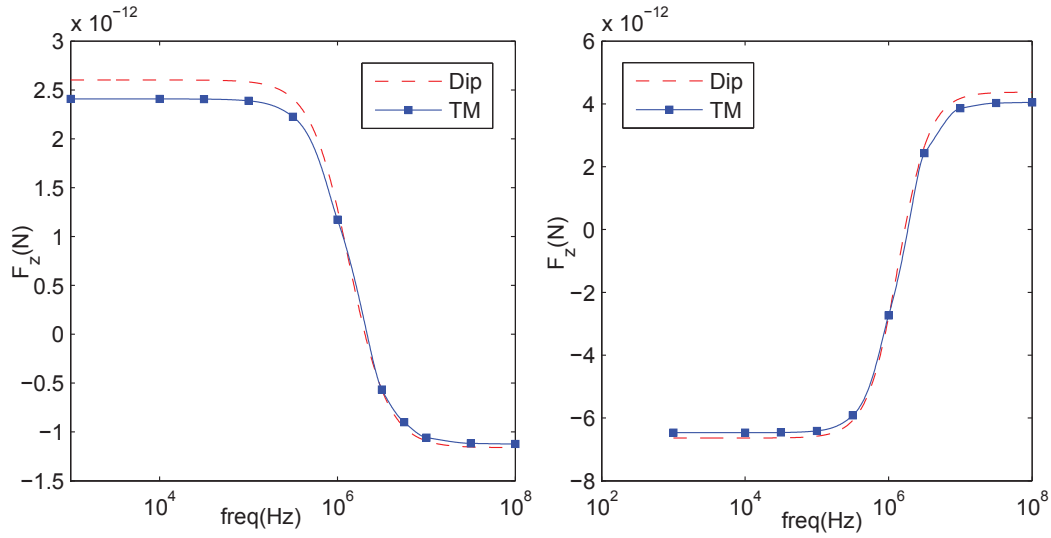


FIGURE 3.16 – Variation de la force en fonction de la fréquence calculée avec le modèle dipolaire (Dip) et avec le tenseur de Maxwell (TM). La figure de gauche correspond à une position $H = 50 \mu m$ et la figure de droite à une position $H = 140 \mu m$.

contraintes de Maxwell en éléments finis.

- On constate également que plus la fréquence est élevée plus les deux approches convergent, notamment lorsque la particule est proche du plan des électrodes. Notons que ceci aura une certaine influence sur la précision des caractéristiques diélectriques qui peuvent être déduites à partir du spectre diélectrophorétique de la particule 4.3.2.

3.3 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté des approches mettant en oeuvre les moments multipolaires pour évaluer les effets électromécaniques agissant sur une particule diélectrique soumise à un champ d'excitation. Des développements théoriques ont été réalisés pour formaliser ces approches dans plusieurs cas. Il a été montré que l'approche dipolaire classique permet dans certains cas de bien approcher la force et le couple exercés sur la particule. Cependant, dans des situations où le champ présente de fortes non-uniformités, le fait d'inclure des ordres supérieurs dans le développement multipolaire présente un réel intérêt.

Bibliographie

- [Bird 1987] R.B. Bird et O. Hassager. Dynamics of polymeric liquids : Fluid mechanics. Dynamics of Polymeric Liquids. Wiley, 1987. (Cité en page 69.)

- [Com] *COMSOL Multiphysics*. (Cité en page 86.)
- [Committee 1950] Coulomb's Law Committee. *The Teaching of Electricity and Magnetism at the College Level. I. Logical Standards and Critical Issues*. American Journal of Physics, vol. 18, no. 1, pages 1–25, 1950. (Cité en page 64.)
- [Fuhr 1986] G. Fuhr et P. I. Kuzmin. *Behavior of cells in rotating electric fields with account to surface charges and cell structures*. Biophysical journal, vol. 50, no. 5, pages 789–95, Novembre 1986. (Cité en page 78.)
- [Gao 2003] Lei Gao, J. Huang et K. Yu. *Theory of ac electrokinetic behavior of spheroidal cell suspensions with an intrinsic dispersion*. Physical Review E, vol. 67, no. 2, pages 1–10, Février 2003. (Cité en pages 10 et 63.)
- [Green 2002] N.G. Green, A. Ramos et H. Morgan. *Numerical solution of the dielectrophoretic and travelling wave forces for interdigitated electrode arrays using the finite element method*. Journal of Electrostatics, vol. 56, no. 2, pages 235 – 254, 2002. (Cité en page 76.)
- [Hagedorn 1992] Rolf Hagedorn, Günter Fuhr, Torsten Muller et Jan Gimsa. *Traveling-wave dielectrophoresis of microparticles*. ELECTROPHORESIS, vol. 13, no. 1, pages 49–54, 1992. (Cité en page 76.)
- [Holzel 1993] R. Holzel. *Electric field calculation for electrorotation electrodes*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 26, no. 12, page 2112, 1993. (Cité en pages 84 et 85.)
- [Hughes 1994] M.P. Hughes et P.R.C. Gascoyne & R. Pethig X B. Wang F F. Becker. *Computer-aided analyses of electric fields used in electrorotation studies*. J. Phys. D : Appl. Phys., vol. 27, no. 7, page 1564, 1994. (Cité en pages 63, 84 et 85.)
- [Hughes 1998] Michael Pycraft Hughes. *Computer-aided analysis of conditions for optimizing practical electrorotation*. Physics in Medicine and Biology, vol. 43, no. 12, page 3639, 1998. (Cité en pages 17 et 85.)
- [Hughes 1999] Michael P Hughes, Steffen Archer et Hywel Morgan. *Mapping the electrorotational torque in planar microelectrodes*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 32, no. 13, page 1548, 1999. (Cité en pages 21 et 85.)
- [Jones 1985] Thomas B. Jones. *Multipole Corrections to Dielectrophoretic Force*. IEEE Transactions on Industry Applications, vol. IA-21, no. 4, pages 930–934, Juillet 1985. (Cité en pages 67 et 71.)
- [Jones 1986] T.B Jones. *Dielectrophoretic force in axisymmetric fields*. J. Electrostatics, vol. 18, pages 55–62, 1986. (Cité en pages 58, 64 et 65.)
- [Jones 1994] T.B. Jones et Masao Washizu. *Equilibria and dynamics of DEP-levitated particles : multipolar theory*. Journal of Electrostatics, vol. 33, no. 2, pages 199 – 212, 1994. (Cité en pages 15 et 63.)
- [Jones 1995] T. B. Jones. *Electromechanics of particles*. Cambridge Univ Press, 1995. (Cité en pages 9, 14, 15, 16, 18, 20, 21, 36, 45, 46, 50, 56, 58, 63, 64 et 81.)

- [Jones 2003] Thomas B Jones. *Basic theory of dielectrophoresis and electrorotation*. IEEE engineering in medicine and biology magazine : the quarterly magazine of the Engineering in Medicine & Biology Society, vol. 22, no. 6, pages 33–42, 2003. (Cité en pages 9, 10, 12, 19, 22, 44, 50 et 65.)
- [Karan 2011] Karan et Kaler. *Comparison of the effective dipole method for the computation of the torque with the Maxwell's stress tensor method in non-lossy systems*. The journal of physical chemistry. B, vol. 115, no. 26, pages 8506–8517, Juillet 2011. (Cité en page 64.)
- [Masao 1993] Washizu Masao, T. B. Jones et K. V. I. S. Kaler. *Higher-order dielectrophoretic effects : levitation at a field null*. Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - General Subjects, vol. 1158, no. 1, pages 40–46, 1993. (Cité en pages 64 et 72.)
- [Morgan 2003] H. Morgan et N.G. Green. *Ac electrokinetics : colloids and nanoparticles*. Numeéro 2 de Microtechnologies and microsystems series. Research Studies Press, Philadelphia, PA, USA, 2003. (Cité en pages 8, 13, 14 et 63.)
- [Nicolini 1998] Claudio. Nicolini, A. Chiabrera, . Schwan Herman P. et North Atlantic Treaty Organization. *Interactions between electromagnetic fields and cells*, edited by chiabrera,a. and nicolini,c. schwan,and h.p., volume 43. Published in cooperation with NATO Scientific Affairs Division [by] Plenum Press, New YorkPlenum Press, New York, 1998. (Cité en pages 10, 63 et 79.)
- [Ogbi 2012] A. Ogbi, L. Nicolas, R. Perrussel, S. J. Salon et D. Voyer. *Numerical Identification of Effective Multipole Moments of Polarizable Particles*. IEEE Transactions on Magnetics, vol. 48, pages 675–678, Février 2012. (Cité en pages 50 et 70.)
- [Pohl 1971] H A Pohl et J S Crane. *Dielectrophoresis of cells*. Biophys J, vol. 11, no. 9, pages 711–27, 1971. (Cité en page 63.)
- [Pohl 1978] H. A. Pohl. *Dielectrophoresis : the Behavior of Neutral Matter in Nonuniform Electric Fields*. Cambridge University Press, 1978. (Cité en pages 8, 20, 36 et 65.)
- [Ronald 2010] Pethig Ronald. *Dielectrophoresis : Status of the theory, technology, and applications*. Biomicrofluidics, vol. 4, no. 2010, page 022811, 2010. (Cité en pages 8, 18, 22, 50 et 63.)
- [Sauer 1985] F.A. Sauer et R.W. Schlögel. *Torques exerted on cylinders and spheres by external electromagnetic fields*, pages 203–251. Eds. New York : Plenum, 1985, 1985. (Cité en pages 36 et 79.)
- [Schnelle 1999] Thomas Schnelle, Torsten Müller, Stefan Fiedler et Günter Fuhr. *The influence of higher moments on particle behaviour in dielectrophoretic field cages*. Journal of Electrostatics, vol. 46, no. 1, pages 13–28, Mars 1999. (Cité en pages 56, 64, 72 et 99.)
- [Stratton 1941] Julius Adams Stratton. *Electromagnetic theory*. McGraw-Hill, New York, 1st ed. édition, 1941. (Cité en pages 12, 36, 43, 44, 48, 63, 66, 79 et 127.)

Phénomènes électriques interfaciaux et effets électrocinétiques : application à l'électrorotation

Sommaire

4.1	Electrocinétique et double couche électrique	92
4.1.1	Potentiel électrocinétique	92
4.1.2	Double couche électrique : Description et modèles	92
4.1.3	Mobilité électrophoretique des particules rigides	94
4.2	Charges de surface et conductivité surfacique	94
4.3	Electrorotation	97
4.3.1	Dispersion et fréquences caractéristiques pour le modèle dipolaire classique	98
4.3.2	Valeurs caractéristiques	98
4.3.3	Prise en compte des charges surfaciques	102
4.4	Prise en compte des effets électrocinétiques dans le phénomène d'électrorotation	103
4.4.1	Modèle simplifié de cellule	103
4.4.2	Modèle de cellule avec paroi	106
4.5	Conclusion	116
	Bibliographie	116

Dans ce chapitre nous nous intéressons aux mécanismes qui gouvernent les phénomènes interfaciaux, en particulier le comportement des charges dans les électrolytes ioniques et à l'interface entre la particule et son milieu fluide de suspension. En effet, ces charges surfaciques sont rarement prises en compte dans le calcul des effets électromécaniques.

L'étude des phénomènes électrocinétiques intervenant dans la polarisation et le déplacement de la particule ainsi que du fluide l'entourant fera l'objet des sections 4.1 et 4.2. Ces phénomènes se basent sur la formation de la double couche électrique.

Dans les sections 4.3 et 4.4, nous nous intéresserons à la prise en compte de ces effets dans le phénomène d'électrorotation.

4.1 Electrocinétique et double couche électrique

Les principaux effets électrocinétiques induits sur une particule diélectrique immergée dans un milieu électrolytique sont provoqués par la double couche électrique qui se forme lorsque ce milieu est en contact avec la surface chargée de la particule (fig. 4.1).

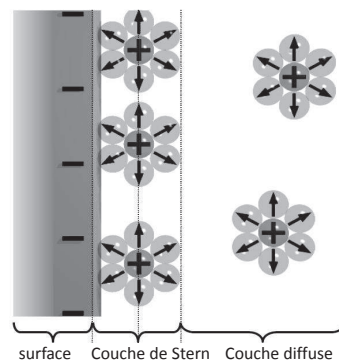


FIGURE 4.1 – Double couche électrique au voisinage d'une surface plane chargée.

4.1.1 Potentiel électrocinétique

Considérons un champ électrique appliqué dans la direction parallèle à l'interface solide/fluide dans la figure (4.1). Selon les modèles interfaciaux classiques, le liquide adjacent au solide a une charge électrique nette, opposée à celle de la surface. Une partie des ions présents dans ce liquide dans la zone la plus proche de la surface de la particule tend à être bien attachée à celle-ci par des forces d'attraction de courte portée, et peut alors être considérée comme immobile. De même le liquide dans cette zone peut être considéré comme immobile. Dans une zone plus lointaine de la surface, les ions et le liquide peuvent se déplacer par l'effet du champ électrique. En effet, le celui-ci agit sur les ions et particulièrement les ions de contre-charge, qui entraînent le liquide dans leur déplacement. Ainsi naît un mouvement interfacial relatif entre le solide et le fluide. Le potentiel sur le plan à l'interface entre les phases mobile et immobile est appelé potentiel électrocinétique, ou le potentiel zêta ζ . Ce plan est appelé plan de glissement ou plan de cisaillement. Il ne coïncide pas forcément avec la surface de la particule, et quand il coïncide et seulement dans ce cas, le potentiel zêta correspond au potentiel de surface Φ_0 . C'est ce cas qui sera considéré dans la suite.

4.1.2 Double couche électrique : Description et modèles

Quand une particule rigide est immergée dans un milieu favorisant la formation d'ions, en particulier dans une solution électrolytique, elle acquiert une charge de

surface. Ces charges ont comme origine des processus divers comme la dissociation et l'ionisation de molécules de surface, ou l'absorption sélective d'ions dans la solution [Lyklema 1995]. Dans tous les cas et quel que soit le mécanisme qui intervient lors de la formation de ces charges de surface, la charge totale de surface doit être compensée par une distribution d'ions autour de la particule de façon à maintenir l'électroneutralité du système. La charge de surface ainsi que ses contre-charges de compensation dans la solution forment ainsi une double couche électrique (DCE). Les premiers modèles de cette double couche ont été décrits par Gouy (1910) et Chapman (1913). Dans ces premiers travaux la couche formée est dite « couche diffuse ». Ce modèle sera modifié plus tard pour définir de façon plus complète la DCE. Ces premiers modèles ont permis d'introduire la longueur de Debye qui caractérise la longueur de cette couche. En 1925, Stern rajouta une couche compacte au modèle de Gouy-Chapman [Kissa 1999] qui portera son nom "couche de Stern". Cette couche se forme en réponse à la présence de groupements chimiques à la surface de la particule et elle peut aussi être induite en appliquant un potentiel sur une surface métallique par exemple.

Pour relier le potentiel dans la DCE aux charges présentes dans cette zone, considérons la charge de surface σ_0 à la surface de la particule. Considérons également un plan parallèle à la surface situé à une distance $x = \beta$ de la particule. La région entre la surface de la particule et ce plan peut être caractérisée par une capacité spécifique C_β , et le potentiel en $x = \beta$ est donné par :

$$\Phi_0 - \Phi_\beta = \frac{\sigma_0}{C_\beta} \quad (4.1)$$

où Φ_0 est le potentiel à la surface solide.

La couche diffuse peut être décrite mathématiquement avec une condition d'équilibre pour les ions dans cette couche [Lyklema 1995] :

$$-ez_i \nabla \Phi - k_B T \ln(\nabla C_i) = 0, \quad i = 1, \dots, N \quad (4.2)$$

où i est le type d'ion, k_B est la constante de Boltzmann, et T est la température absolue. Le premier terme de cette équation correspond à la force électrostatique sur les ions de type i (charge ez_i , concentration C_i) et le second est la force thermodynamique. L'intégration de (4.2) sous la condition $C_i = C_i^0(\infty)$ pour $\Phi = 0$ conduit à la distribution de Boltzmann :

$$C_i(\mathbf{r}) = C_i^0(\infty) \exp[-ez_i \Phi(\mathbf{r})/k_B T], \quad i = 1, \dots, N \quad (4.3)$$

où $C_i^0(\infty)$ est la concentration des ions de type i loin de la particule. L'équation de Poisson permet d'écrire la relation entre le potentiel et les concentrations ioniques :

$$\Delta \Phi(\mathbf{r}) = -\frac{1}{\varepsilon_r \varepsilon_0} \rho(\mathbf{r}) = -\frac{1}{\varepsilon_r \varepsilon_0} \sum_{i=1}^N ez_i C_i^0(\infty) \exp\left[-\frac{ez_i \Phi(\mathbf{r})}{k_B T}\right], \quad (4.4)$$

où $\varepsilon_r \varepsilon_0$ est la permittivité du milieu de suspension. L'équation (4.4), dite équation de Poisson-Boltzmann est le point de départ de la description de Gouy-Chapman de la couche diffuse, qui est le modèle le plus utilisé pour la description de la DCE.

4.1.3 Mobilité électrophoretique des particules rigides

Nous introduisons à présent un modèle pour décrire l'écoulement du fluide contenant une particule sphérique prenant en compte la DCE.

Considérons donc une particule sphérique rigide de rayon a se déplaçant avec une vitesse U dans un fluide (électrolyte) composé de N espèce d'ions, avec des valences z_i et des concentrations volumiques C_i^∞ , et des coefficients de frottement λ_i . En adoptant un système de coordonnées (r, θ, Φ) avec son origine placée au centre de la particule, avec $\theta = 0$ pour l'axe parallèle au champ électrique $\mathbf{E}$, nous considérons les hypothèses suivantes :

- le nombre de Reynolds pour l'écoulement du fluide (liquide) est suffisamment faible pour ignorer les termes d'inertie dans l'équation de Navier-Stokes et le fluide peut être considéré comme incompressible ;
- le champ $\mathbf{E}$ appliqué est relativement faible de sorte que la vitesse U de la particule est proportionnelle à $\mathbf{E}$;
- le plan de glissement est situé à la surface de la particule i.e pour $r = a$.

Les ions de l'électrolyte ne peuvent pas pénétrer la surface de la particule.

Le système d'équations électrocinétiques qui régit le déplacement des particules rigides chargées dans un liquide contenant un électrolyte, engendré par un champ électrique extérieur, est donc un système couplé constitué de l'équation de Navier-Stokes pour l'écoulement du fluide autour de la particule et de l'équation de Poisson reliant le potentiel électrique et la concentration des espèces ioniques qui modélise la DCE 4.4, ainsi que des équations de continuité. L'équation de Navier-Stokes pour l'écoulement du fluide $\mathbf{u}(\mathbf{r})$ autour de la particule est donnée par :

$$\eta \nabla \times \nabla \times \mathbf{u}(\mathbf{r}) + \nabla p(\mathbf{r}) + \rho(\mathbf{r}) \nabla \Phi(\mathbf{r}) = 0, \quad r > a, \quad (4.5)$$

où η est la viscosité de la solution électrolyte, $p(\mathbf{r})$ est la pression, $\rho(\mathbf{r})$ est la densité de charge issue des espèces ioniques mobiles chargées, $\Phi(\mathbf{r})$ est le potentiel électrique, et $r = ||\mathbf{r}||$.

4.2 Charges de surface et conductivité surfacique

L'excédent d'ions dans la DCE peut se déplacer dans la direction tangentielle à la surface sous l'effet du champ électrique appliqué (fig. 4.2). Quelle que soit la distribution de charge, S^σ peut toujours être définie par l'expression bidimensionnelle analogue de la loi d'Ohm :

$$J_s = S^\sigma E \quad (4.6)$$

où J_s est la densité de courant surfacique (A/m) et S^σ est la conductivité surfacique.

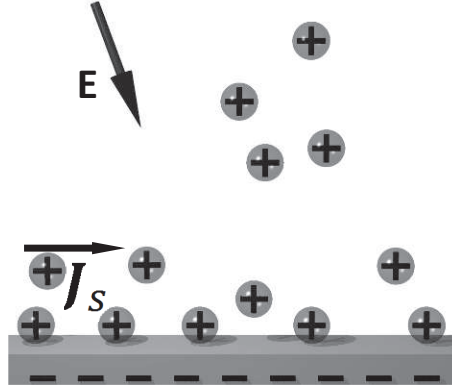


FIGURE 4.2 – Densité de courant surfacique au voisinage d’une surface plane chargée.

Le rapport de la conductivité surfacique S^σ à la conductivité volumique du fluide σ_m de suspension d’une particule est donnée par le nombre sans dimension χ , appelé nombre de Dukhin [Lyklema 1995, Delgado 2007] :

$$\chi = \frac{S^\sigma}{\sigma_m a} \quad (4.7)$$

Selon cette expression, une conductivité externe importante σ_m réduit l’influence potentielle d’une charge surfacique. La conductivité effective σ d’une particule est la somme des deux contributions volumique et surfacique¹ :

$$\sigma = S^\sigma / a + \sigma_p \quad (4.8)$$

La conduction surfacique n’est pas considérée dans la théorie classique de Helmholtz-Smoluchowski couramment utilisée dans les modèles de conduction pour les systèmes dispersifs [Grosse 1998]. Dans cette théorie, seule la conductivité intrinsèque de la particule σ_p est prise en compte pour le calcul du champ électrique tangentiel dans la double couche électrique. Par conséquent, en plus de la condition de rayon électrocinétique κa grand², qui signifie que la longueur de Debye κ^{-1} est petite par rapport au rayon de la particule :

$$\kappa a \gg 1, \quad (4.9)$$

l’applicabilité de la théorie de Helmholtz-Smoluchowski nécessite de très faible valeur de χ :

$$\chi \ll 1. \quad (4.10)$$

1. La conductivité surfacique est donnée à l’extérieur de la particule dans la double couche électrique

2. La quantité κa est appelée aussi rayon électrocinétique

En général la conductivité surfacique est constituée de deux contributions relatives d'une part à la couche diffuse de la couche externe au plan de glissement $S^{\sigma d}$ et d'autre part à la couche stagnante $S^{\sigma i}$ [Lyklema 2001] :

$$S^{\sigma} = S^{\sigma d} + S^{\sigma i} \quad (4.11)$$

Par conséquent, χ peut s'écrire :

$$\chi = \frac{S^{\sigma d}}{\sigma_m a} + \frac{S^{\sigma i}}{\sigma a} = \chi^d + \chi^i \quad (4.12)$$

La conductivité surfacique due à la couche stagnante inclut en général une contribution due aux ions spécifiquement absorbés ainsi qu'une contribution causée par les ions qui résident entre la surface de la particule et le plan de cisaillement. La charge intrinsèque à la surface solide, qui est la charge causée par les groupes ionisés, est considérée en général comme immobile et ne contribue pas à S^{σ} .

La conductivité dans la partie diffuse de la double couche électrique en dehors du plan de cisaillement $S^{\sigma d}$ se compose de deux parties : une contribution de migration, engendrée par le déplacement des ions par rapport au fluide, et une contribution de type convection, due à l'écoulement électro-osmotique au delà du plan de cisaillement. Pour le calcul de $S^{\sigma d}$, l'équation de Birkermann peut être utilisée. Cette équation exprime $S^{\sigma d}$ comme une fonction de la concentration de l'électrolyte et des paramètres de la double couche électrique [Shilov 2001]. Pour une électrolyte $z - z$ symétrique, cette équation peut être écrite :

$$S^{\sigma d} = \frac{2\sigma_m}{\kappa} \left[\frac{D^+}{D^+ + D^-} \left(\exp \left(-\frac{z\zeta}{2} - 1 \right) (1 + 3m^+) \right) + \frac{D^+}{D^+ + D^-} \left(\exp \left(\frac{z\zeta}{2} \right) - 1 \right) (1 + 3m^-) \right] \quad (4.13)$$

où $D^{\pm}$ est le coefficient de diffusion ionique et

$$\sigma_m = \sigma_m^+ \sigma_m^- \quad (4.14)$$

avec

$$\sigma_m^{\pm} = \frac{z^2 e^2 C_0}{kT} D^{\pm} \quad (4.15)$$

Les paramètres $m^{\pm}$ indiquent la contribution de l'électro-osmose à la conductivité surfacique, et sont donnés par :

$$m^{\pm} = \frac{2}{3} \left(\frac{k_B T}{e} \right)^2 \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r}{\eta D^{\pm}} \quad (4.16)$$

Dans le cas donc d'un électrolyte $z - z$ symétrique et de coefficients de diffusion des anions et des cations identiques ($m^+ = m^- = m$), la conductivité dans la partie diffuse du double couche peut s'écrire :

$$\chi^d = \frac{S^{\sigma d}}{\sigma_p a} = \frac{2}{\kappa a} \left(1 + \frac{3m}{z^2} \right) \left[\cosh \left(\frac{ze\zeta}{2k_B T} \right) - 1 \right] \quad (4.17)$$

Cette équation montre que le rapport entre la conductivité surfacique de la couche diffuse et la conductivité volumique, exprimé par χ^d , est faible sous la condition de κa grand ($\kappa a \gg 1$) et un potentiel zêta faible.

En remplaçant cette expression de χ^d dans l'équation (4.12), on obtient :

$$\chi = \frac{2}{\kappa a} \left(1 + \frac{3m}{z^2} \right) \left[\cosh \left(\frac{ze\zeta}{2k_B T} \right) - 1 \right] \left(1 + \frac{S^{\sigma i}}{S^{\sigma d}} \right) \quad (4.18)$$

Cette équation montre que le nombre de Dukhin χ dépend en général du potentiel zêta, de la mobilité des ions dans l'électrolyte, et du rapport $\frac{S^{\sigma i}}{S^{\sigma d}}$. Elle montre également que la condition $\chi \ll 1$ requise dans le modèle classique de helmholtz-smoluchowski est vérifiée pour $\kappa a \gg 1$, des valeurs plutôt faible de ζ et des rapports $\frac{S^{\sigma i}}{S^{\sigma d}} < 1$.

4.3 Electrorotation

Avec l'avènement des Bio-MEMS, l'électrorotation, qui est une technique particulière de diélectrophorèse, connaît aujourd'hui une popularité grandissante pour la manipulation et l'analyse de particules isolées telles que les cellules biologiques.

La théorie classique d'électrorotation [Zimmermann 1996] est basée sur l'hypothèse que la diffusion des ions peut être négligée dans l'étude de la réponse des particules en suspension dans un électrolyte. L'épaisseur de la distribution de charges induite au voisinage de l'interface est donc considérée comme nulle, et les effets de convection n'apparaissent pas dans le modèle. L'électrorotation a alors été expliquée exclusivement comme une conséquence du couple exercé par le champ électrique sur la partie imaginaire du moment dipolaire, en considérant que le couple est transféré directement à la particule. Cependant cette théorie n'est plus adaptée en basse fréquences lorsque la DCE a le temps de se former.

Nous avons vu que les charges qui forment le moment dipolaire ne sont pas limitées à la particule mais sont situées en partie dans le fluide chargé qui entoure la particule. Ainsi, seule une partie du couple créé par le champ électrique agit sur la particule, alors que le reste de ce couple agit sur le fluide chargé, conduisant à un mouvement convectif du liquide par rapport à la particule. Cette partie du couple est transmise à la particule par l'effet de forces visqueuses. Par conséquent, pour obtenir la vitesse de rotation réelle, la vitesse du fluide par rapport à la particule doit être retranchée de la valeur obtenue avec le modèle dipolaire classique appliqué au système étudié (particule-champ). La prise en compte des effets de diffusion et de convection dans le calcul de la vitesse d'électrorotation se fait alors en deux étapes. La première étape consiste à appliquer la théorie usuelle d'électrorotation en calculant le moment dipolaire du système et en l'utilisant dans l'équation classique

de l'électrorotation 4.22 pour calculer la vitesse de rotation électromécanique. La seconde étape consiste à calculer le déplacement du fluide autour de la particule. La présence d'un champ électrique tangentiel induit un mouvement de rotation électro-osmotique du liquide chargé par rapport à la surface de la particule. La vitesse de rotation de la particule est ensuite obtenue par différence entre la vitesse de rotation de la surface imaginaire qui entoure le fluide chargé et la vitesse de rotation de ce fluide par rapport à la particule :

$$\Omega = \Omega_D + \Omega_s \quad (4.19)$$

où Ω_D est la vitesse d'électrotation classique³ basée sur le moment dipolaire induit, et Ω_s la nouvelle contribution de la rotation lié au glissement électro-osmotique de la particule par rapport à la double couche électrique l'entourant.

4.3.1 Dispersion et fréquences caractéristiques pour le modèle dipolaire classique

L'étude de la dispersion diélectrique d'une suspension inclut la détermination de ses propriétés caractéristiques, de ses constantes électriques et de ses conductivités, comme des fonctions de la fréquence. Des changements significatifs de ces caractéristiques en fonction de la fréquence, ayant lieu à des fréquences particulières, sont appelés par convention dispersions diélectriques. Ces dispersion sont directement liées à la structure et à l'état physique et physiologique des particule manipulées. La dispersion dite α (illustré par (fig. 1.1) pour un tissu biologique) est généralement considérée comme étant associée aux propriétés des membranes cellulaires et à leurs interactions avec les milieux intra- et extra-cellulaires. Elle est caractérisée par des valeurs de permittivité très grandes, qui sont produites par les processus de diffusion de contre-ions au niveau de la membrane cellulaire à des fréquences très basses. La dispersion α est en réalité la moins bien comprise des trois dispersions principales, ce qui conduit au fait que sa contribution est souvent occultée dans la modélisation du comportement diélectrique des particules manipulées. Ici se situe donc l'intérêt de l'étude électrocinétique réalisée dans la partie 4.1-4.2 et sa prise en compte dans l'application à l'électrorotation (4.4).

La dispersion β se produisant aux radio-fréquences est principalement due à la polarisation de la membrane cellulaire qui conduit à son court-circuit d'un point de vue électrique. Lorsque la fréquence augmente dans les régions des GHz, les propriétés de rotation des molécules polaires, en particulier celles de l'eau, deviennent importantes. La relaxation des molécules d'eau libres provoque la dispersion γ .

4.3.2 Valeurs caractéristiques

Selon le modèle dipolaire classique, le facteur complexe de Clausius-Mossotti $\underline{K} = K' + jK''$ peut être défini en terme d'admittance ($\sigma_e^* = \sigma + j\omega\epsilon_0\epsilon$) comme :

3. fonction uniquement des grandeurs caractéristiques de la particule polarisée via la partie imaginaire du facteur de polarisation.

$$K^* = \frac{\sigma_p^* - \sigma_e^*}{\sigma_p^* + 2\sigma_e^*} \quad (4.20)$$

Le couple d'électrorotation calculé avec le modèle dipolaire [Schnelle 1999b] est donné par :

$$\bar{T} = 4\pi\epsilon_0\epsilon_e\bar{E}_0^2 \sum_s^n \left[M_s \frac{f/f_{cs}}{1 + (f/f_{cs})^2} \right] \quad (4.21)$$

où n est le nombre des diélectriques composant la cellule. Ici les quantités M_s sont des combinaisons des constantes électriques des matériaux de la particule. f_{cs} représentent les fréquences caractéristiques du spectre.

La vitesse d'électrorotation issue de ce modèle s'écrit :

$$\Omega_D = -\frac{\epsilon_0\epsilon_e K''}{2\eta} \quad (4.22)$$

où η est la viscosité du milieu.

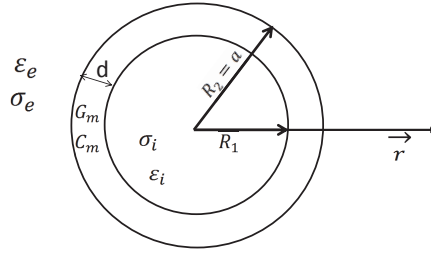


FIGURE 4.3 – Représentation de la cellule selon le modèle “Single-shell”, avec i =milieu interne (i.e cytoplasme), avec une conductivité (σ_i), et une permittivité (ϵ_i); m = système de membrane (G_m, ϵ_m); e = milieu extérieure (σ_e, ϵ_e)

Considérons un modèle de particule simple représentée par une sphère homogène conductrice et non-dispersive entourée par une couche très fine représentant la membrane (fig. 4.3). Pour cette configuration de particule, la membrane domine le comportement de rotation dans la gamme de fréquence des kHz, alors que la polarisation du cytoplasme, qui dépend du rapport entre la conductivité interne et externe σ_i et σ_e , détermine le spectre de rotation dans la gamme des MHz. La vitesse d'électrorotation dans ce cas est donnée par :

$$\Omega_D = 2M_1 \frac{f/f_{c1}}{1 + (f/f_{c1})^2} + 2M_2 \frac{f/f_{c2}}{1 + (f/f_{c2})^2} \quad (4.23)$$

Le facteur de polarisation $\underline{K}$ peut être écrit en introduisant des paramètres spécifiques de surface décrivant les propriétés de la membrane [Holzapfel 1982] :

$$\underline{K} = \frac{\omega^2 \varepsilon_0^2 A_1 + i\omega \varepsilon_0 B_1 + C_1}{\omega^2 \varepsilon_0^2 A_2 + i\omega \varepsilon_0 B_2 + C_2} \quad (4.24)$$

où A_1 A_2 B_1 B_2 C_1 C_2 sont des quantités qui dépendent des conductivités et des constantes diélectriques. Ces quantités sont définies par :

$$A_1 = \varepsilon_0 \varepsilon_i / a + C(\varepsilon_e - \varepsilon_i) / \varepsilon_0 \quad (4.25)$$

$$A_2 = -2\varepsilon_0 \varepsilon_i / a - C(2\varepsilon_e + \varepsilon_i) / \varepsilon_0 \quad (4.26)$$

$$B_1 = C(\sigma_i - \sigma_e) / \varepsilon_0 \quad (4.27)$$

$$B_2 = C(\sigma_i + 2\sigma_e) / \varepsilon_0 \quad (4.28)$$

$$C_1 = G_m(\sigma_i - \sigma_e) - \sigma_i \sigma_e / a \quad (4.29)$$

$$C_2 = G_m(\sigma_i + 2\sigma_e) + 2\sigma_i \sigma_e / a \quad (4.30)$$

$$(4.31)$$

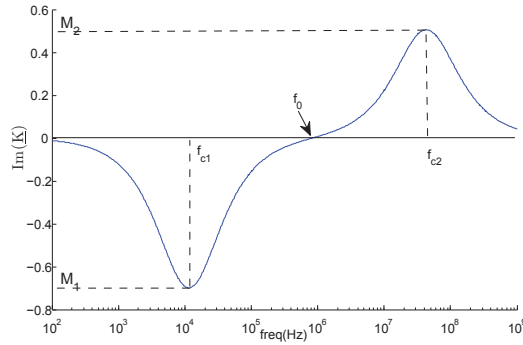


FIGURE 4.4 – Spectre de rotation des cellules calculé théoriquement selon le modèle “single-shell” pour différentes valeurs de la conductivité du milieu de suspension.

Il y a cinq valeurs caractéristiques dans (Fig.4.4) :

- Les valeurs des deux pics de vitesse de rotation sont données par :

$$M_1 = \frac{-\sigma_i/2}{(\sigma_i + 2\sigma_e)[aG_m(1/\sigma_e + 2/\sigma_i) + 2]}, \quad (4.32)$$

et

$$M_2 = \frac{1}{2} \left(\frac{\varepsilon_e - \varepsilon_i}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_e} + \frac{\sigma_i - \sigma_e}{\sigma_i + 2\sigma_e} \right), \quad (4.33)$$

- Les trois points de dispersion diélectrique correspondant aux fréquences caractéristiques de rotation sont donnés par :

$$f_{c1} = \frac{1}{2\pi aC} \left(\frac{1}{1/2\sigma_e + 1/\sigma_i} + rG_m \right), \quad (4.34)$$

$$f_{c2} = \frac{(\sigma_i + 2\sigma_e)}{[2\pi\epsilon_0(\epsilon_i + 2\epsilon_e)]}, \quad (4.35)$$

$$f_0 = \frac{1}{2\pi} (\sigma_i / [\epsilon_0 a C (\epsilon_e / \sigma_e - 2\epsilon_i / 3\sigma_i)])^{1/2}, \quad (4.36)$$

où f_0 est la fréquence à laquelle la rotation change de sens.

A noter qu'on retrouve là des expressions similaires à celles des valeurs caractéristiques d'un spectre de diélectrophorèse (annexe F).

Pour le cas du modèle simple de cellule biologique, les propriétés électriques sont habituellement exprimées par des admittances, des capacitances et des conductances (fig. 4.5) :

$$\sigma'_p = G'_m \frac{\sigma'_m + \frac{1}{3}(\sigma'_i - G'_m)(1 + 2\mu)}{G'_m + \frac{1}{3}(\sigma'_i - G'_m)(1 - \mu^3)} \quad (4.37)$$

où $\mu = a/(a+d)$, avec d l'épaisseur de la membrane et σ'_i l'admittance du cytoplasme. Pour $d \ll a$ l'équation (4.37), se simplifie en :

$$\sigma'_p = G'_m \frac{a\sigma'_i}{aG'_m + \sigma_i} \quad (4.38)$$

G'_m est l'admittance de la membrane. Elle est donnée par :

$$G'_m = G_m + j\omega C_m \quad (4.39)$$

où $G_m = \frac{\sigma_m}{d}$ et $C_m = \frac{\epsilon_m}{d}$ sont respectivement la capacitance (Fm^{-2}) et la conductance (Sm^{-2}) spécifiques de surface de la membrane.

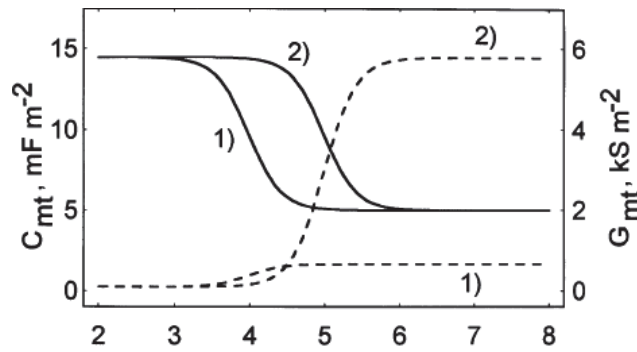


FIGURE 4.5 – Comportement de la capacitance et de la conductance électriques pour différentes valeurs de la conductivité du milieu de suspension (modèle "single-shell").

La vitesse de rotation de la particule peut être obtenue en combinant (4.38) et (4.39) et en substituant K'' dans (4.22).

4.3.3 Prise en compte des charges surfaciques

Comme cela a été décrit dans la section 4.2, la couche diffuse composée de surplus de contre-ions se forme au voisinage immédiat de la surface chargée de la particule. L'introduction du nombre de Dukhin, dépendant de la concentration de l'électrolyte et de la densité de charge de surface, permet de prendre en considération l'augmentation de la conductivité due à la formation de cette couche. Ce nombre affecte directement les constantes dépendant de la conductivités A_1 , A_2 , B_1 , B_2 , C_1 et C_2 qui déterminent les fréquences caractéristiques :

$$f_{c1} = \frac{C_2}{2\pi\epsilon_0 B_2}; \quad f_{c2} = \frac{-B_2}{2\pi\epsilon_0 A_2} \quad (4.40)$$

et qui s'écrivent donc explicitement :

$$f_{c1} = \frac{d}{4\pi^2\epsilon_0\epsilon_m a \left(\frac{1}{\sigma_i + 1} + \frac{1}{2G_e(1 + \chi)} \right)} \quad (4.41)$$

$$f_{c2} = \frac{\sigma_i + 2\sigma_e(1 + \chi)}{4\pi^2\epsilon_0(\epsilon_i + 2\epsilon_e)} \quad (4.42)$$

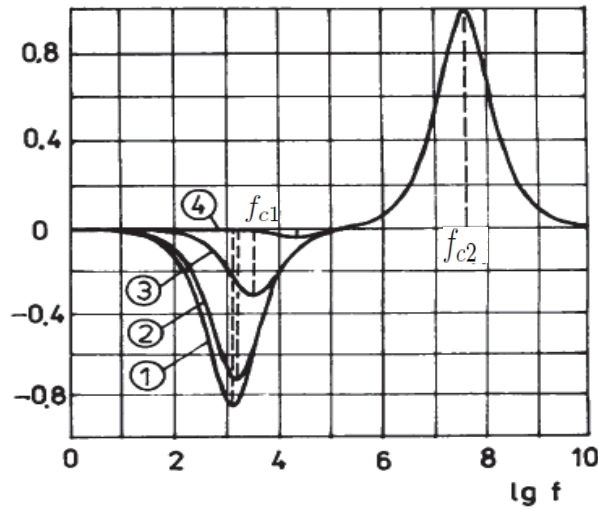


FIGURE 4.6 – Couple exercé sur la particule pour différentes valeurs de χ : 0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.4 correspondants aux courbes 1, 2, 3, 4 et 5 respectivement

Les charges surfaciques agissent de la même façon qu'une augmentation de la conductivité du milieu de suspension : Les valeurs élevées de celle-ci décalent en effet la fréquence caractéristique vers des valeurs supérieures et diminuent la vitesse angulaire. On note également que la charge de surface représentée par la quantité χ

décale seulement f_{c1} vers des valeurs supérieures. D'autre part, quand la charge de surface augmente, le couple diminue, de même que la vitesse angulaire au voisinage de f_{c1} . Avec l'utilisation de valeurs réalistes pour la charge de surface ($0 < \chi < 0.3$) un décalage maximal de la fréquence caractéristique jusqu'à 30% peut être observé.

4.4 Prise en compte des effets électrocinétiques dans le phénomène d'électrorotation

Comme souligné au premier chapitre, la prise en compte des effets de diffusions permet de coupler les phénomènes électrocinétiques aux phénomènes purement électromécaniques modélisés lorsqu'on met en oeuvre la théorie dipolaire classique. Dans cette dernière, on résout un simple laplacien. Pour prendre en compte les effets cinétiques, on résout un système couplé composé :

- des équations de Nernst-Planck,
- de l'équation de Navier Stokes,
- de l'équation de Poisson.

Les équations sont couplées de la façon suivante. L'équation de Poisson relie la distribution du potentiel électrique à la densité de charge volumique, cette dernière étant liée à la distribution des ions. La distribution d'ions est fournie par les équations de Nernst-Planck, qui nécessitent les composantes de la vitesse du fluide pour obtenir le flux de convection ainsi que le champ électrique pour obtenir le flux de migration. Les composantes de la vitesse sont fournies par les équations de Navier-Stokes et de continuité, tandis que le champ électrique est fourni à partir de la solution de l'équation de Poisson. Enfin, la solution des équations de Navier-Stokes implique de connaître la force électrique déterminée à partir des équations de Poisson et de Nernst-Planck.

4.4.1 Modèle simplifié de cellule

Nous traitons ici un modèle simplifié de cellule, avec une structure composée d'un cytoplasme et d'une membrane extérieure, dans le cas de l'approximation de double couche mince puis dans le cas plus général.

4.4.1.1 Cas de la double couche mince

La vitesse u_{eo} est la composante de la vitesse de glissement électro-osmotique de la surface externe de la double couche électrique par rapport à la surface de la particule dans le modèle électrocinétique classique [Hughes 2003]. Au voisinage de n'importe quel point de la surface considérée comme quasi-plate, la valeur de cette vitesse est exprimée en fonction de la composante tangentielle du champ électrique E_s par la formule de Smoluchowski :

$$u_{eo} = -\frac{\varepsilon_e \varepsilon_0 \zeta}{\eta} E_s \quad (4.43)$$

où ζ est le potentiel électrocinétique, η est la viscosité. Nous sommes dans le cadre de l'hypothèse de couche mince représentée à la figure (4.7),

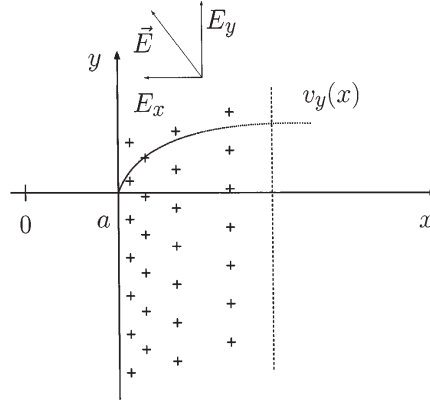


FIGURE 4.7 – Surface plate en contact avec un électrolyte en présence d'un champ électrique sous l'hypothèse de la double couche mince, ici v_y est la composante tangentielle de la vitesse (annexe G).

La composante normale E_x du champ induit une distribution de charge $\rho(x)$, alors que sa composante tangentielle E_y engendre un mouvement du liquide parallèle à la surface. L'expression de la vitesse est donnée par l'équation de Navier Stokes pour un écoulement stationnaire et un faible nombre de Reynolds :

$$\eta \Delta \mathbf{u} - \nabla \mathbf{p} = \mathbf{f}_e \quad (4.44)$$

où $\mathbf{f}_e = -\rho(x)\mathbf{E}$ est la force appliquée sur le liquide, et $\mathbf{u}$ est la vitesse du liquide. En développant (G.3), pour le cas de la figure 4.7 et en utilisant la formule de Smoluchowski, on obtient la vitesse angulaire de la particule par rapport au fluide à la surface externe de la double couche électrique mince [Grosse 1998, Zimmerman 1999] (voir annexe G). Celle-ci est donnée par :

$$\Omega_s = -\frac{\omega_s}{a} = -\frac{E_0}{2\eta a} \left(\operatorname{Re} \left(1 - \frac{K_1}{a^3} \right) \operatorname{Im}(\gamma) + \operatorname{Im} \left(\frac{K_1}{a^3} \right) \operatorname{Re}(\gamma) \right) \quad (4.45)$$

avec

$$\gamma = \int_a^\infty s \rho(s) ds - a \int_a^\infty \rho(s) ds$$

où ρ est la densité de charge volumique.

La vitesse angulaire totale de l'électrorotation observée expérimentalement est donnée par la superposition des deux contributions :

$$\Omega = \Omega_D + \Omega_s \quad (4.46)$$

où Ω_D est la vitesse classiquement obtenue avec le modèle des moments dipolaires et Ω_s est la vitesse de glissement électro-osmotique de la particule et sa double couche mince par rapport au fluide.

4.4.1.2 Cas général de la double couche électrique

Pour calculer la vitesse d'électrorotation dans une forme plus générale, en évitant les approximations de la double couche mince, il faut revenir au point de départ qui est l'équation de Navier-Stokes avec un champ électrique tournant appliqué au système :

$$\rho_m \left[\frac{\partial \mathbf{u}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + (\mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \cdot \nabla) \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \right] + \eta \Delta \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) - \nabla p(\mathbf{r}, t) = f_e \quad (4.47)$$

où $\mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$ est la vitesse de rotation de l'électrolyte, $p(\mathbf{r}, t)$ est la pression, η et ρ_m sont la viscosité et la densité de masse de l'électrolyte. Le second membre de l'équation représente la densité de force électrique :

$$f_e = -\rho \nabla \Phi \quad (4.48)$$

$$= -e(z^+ C^+(\mathbf{r}, t) + z^- C^-(\mathbf{r}, t)) \nabla \Phi \quad (4.49)$$

où $\phi(\mathbf{r}, t)$ est le potentiel électrique, $z^\pm$ et $C^\pm(\mathbf{r}, t)$ sont la valence et la concentration des ions positifs et négatifs, et e est la charge élémentaire.

La concentration et la distribution du potentiel électrique dans (4.48) peuvent être exprimées en terme de leur valeur d'équilibre [Lyklema 1995, Grosse 1998]

$$\Phi(\mathbf{r}, t) = \Phi_0(r) + \hat{\Phi}(\mathbf{r}, t) \quad (4.50)$$

$$C^\pm(\mathbf{r}, t) = C_0^\pm(r) + \hat{C}^\pm(\mathbf{r}, t) \quad (4.51)$$

où $\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t)$ et $\hat{C}^\pm(\mathbf{r}, t)$ sont les modifications induites par le champ électrique apportées au potentiel et à la concentration respectivement. En réécrivant les distributions de potentiel électrique et de la concentration comme la superposition de deux distributions générées par deux champs électriques alternatifs perpendiculaires et déphasés de 90° , on obtient la vitesse de rotation du liquide :

$$\Omega(r) = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon E_0}{2\eta r^3} \text{Im}(\underline{K}) - \frac{1}{3\eta} \int_r^\infty s(x) dx + \frac{1}{3\eta r^3} \int_r^\infty x^3 s(x) dx \quad (4.52)$$

La particule considérée étant rigide, sa vitesse angulaire de rotation est donnée par :

$$\Omega = \Omega(a) = -\frac{\varepsilon_0 \varepsilon E_0}{2\eta a^3} \text{Im}(\underline{K}) - \frac{1}{3\eta} \int_a^\infty \left(1 - \frac{x^3}{a^3} \right) s(x) dx \quad (4.53)$$

où

$$s(z) = \frac{e}{2r} \left[\text{Re} \left\{ z^+ \hat{C}^+(r) + z^- \hat{C}^-(r) \right\} \text{Im} \left(\hat{\Phi}(r) \right) - \text{Im} \left\{ z^+ \hat{C}^+(r) + z^- \hat{C}^-(r) \right\} \text{Re} \left(\hat{\Phi}(r) \right) \right] \quad (4.54)$$

Le premier terme dans (4.53) représente l'expression classique rencontrée jusque là pour la vitesse d'électrorotation d'une particule sphérique obtenue par le modèle dipolaire classique, alors que le second terme représente la contribution électrosmotique dans le cas général de DCE.

Pour résoudre (4.53), le potentiel $(\Phi(\mathbf{r}, t))$, la concentration d'ions $C^\pm(\mathbf{r}, t)$ et la vitesse de l'électrolyte $\mathbf{u}(\mathbf{r}, t)$ doivent être calculés en résolvant pour chaque espèce d'ions le système donné par :

— Equation de Poisson

$$\Delta\Phi(\mathbf{r}, t) = -\frac{e}{\varepsilon_0\varepsilon_j} \left(z_j^+ C^+(\mathbf{r}, t) + z_j^- C^-(\mathbf{r}, t) \right), \quad 0 < r < R_3, R_2 < r, j = e, i \quad (4.55)$$

— Equation de Nernst-Planck

$$\mathbf{J}^\pm(\mathbf{r}, t) = -D_j^\pm \nabla C^\pm(\mathbf{r}, t) - \frac{e z_j^\pm D_j^\pm}{kT} C^\pm \nabla \Phi + C^\pm(\mathbf{r}, t) \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \quad (4.56)$$

— Equation de continuité

$$\nabla \cdot \mathbf{J}^\pm = -\frac{\partial C^\pm(r, t)}{\partial t} \quad (4.57)$$

— Equation de Navier-Stokes

$$\begin{aligned} \eta \Delta \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) - \nabla \mathbf{p}(\mathbf{r}, t) + \rho_m \left[\frac{\partial \mathbf{u}(\mathbf{r}, t)}{\partial t} + (\mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \cdot \nabla) \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \right] \\ = -e(z^+ C^+(\mathbf{r}, t) + z^- C^-(\mathbf{r}, t)) \nabla \Phi(\mathbf{r}, t) \end{aligned} \quad (4.58)$$

— Condition d'incompressibilité du fluide

$$\nabla \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) = 0 \quad (4.59)$$

4.4.2 Modèle de cellule avec paroi

Dans cette section nous traitons le cas d'une particule sphérique conductrice composée d'un cytoplasme et d'une membrane non-conductrice, et entourée par une paroi, avec prise en compte des effets de diffusion⁴.

Chaque milieu sauf la membrane est caractérisé par une conductivité complexe σ_j et un coefficient de diffusion D_j . Nous considérons dans les paragraphes qui suivent que les deux milieux, cytoplasme et milieu extérieur, ont des ions monovalents avec la même mobilité ($\mu_j = \mu_j^\pm$), le même coefficient de diffusion ($D_j = D_j^\pm$), et la même densité numérique ($n_{0j} = n_{0j}^\pm$).

La conductivité de chaque milieu peut s'écrire :

4. négligés dans les modèles dipolaire classiques

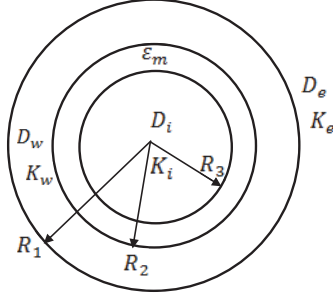


FIGURE 4.8 – Particule sphérique avec membrane non-conductrice, entourée par une paroi.

$$\sigma_j = 2n_0j\mu_j e = 2n_0jD_j \frac{e^2}{kT} \quad (4.60)$$

Les particules considérées dans les applications en électrorotation sont généralement représentées par des sphères rigides ne présentant pas de charge fixe sur leur coque externe (paroi). Il se trouve que ce modèle n'est souvent pas le plus adapté, notamment pour les cellules biologiques, compte-tenu de leur structure particulière [Ohshima 2010]. Nous traitons séparément le cas de particule avec paroi sans charges fixes et de particule présentant des charges fixes.

4.4.2.1 Modèle sans charges fixes

La non-présence de charges fixes permet l'avantage de ramener le problème de la particule avec paroi à un problème de particule homogène équivalente. L'objectif est alors de déterminer les paramètres équivalents correspondants à celle-ci, avec un système d'équation plus complexe, incluant les équations de diffusion et de convection, ainsi que les équations présentées précédemment prenant en compte les effets électrocinétiques, notamment pour la contribution électro-osmotique à sa rotation.

La détermination du modèle homogène équivalent suit un schéma relativement similaire à celui suivi pour le cas de la particule rigide sans considérations électro-osmotiques, abordé précédemment. Il donne lieu à un calcul analytique un peu plus fastidieux et qui est résumé ainsi : la conductivité équivalente de la particule est d'abord déterminée ; le potentiel électrique et la distribution de charge volumique pour la particule homogène entourée par une coque et soumise à un champ externe sont ensuite calculés ; on obtient ensuite l'expression du moment de premier ordre de la densité de charge induite autour de la particule, donnée par :

$$\gamma = \frac{-2\varepsilon_0\varepsilon_e\sigma_e(\Lambda_e a)^2}{(1 + \Lambda_e a)} \frac{\gamma^p\sigma_e - \gamma_e\sigma_p}{\gamma^p\sigma_e L_e - \gamma_e\sigma^p L^p} \left(e^{\Lambda_e a} \int_{\Lambda_e^a}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t} \right) \left(\frac{(K)_e}{a^3} + \frac{1}{2} \right) E_0 a \quad (4.61)$$

Cette dernière expression est utilisée dans (4.46) pour calculer la vitesse de rotation de la surface imaginaire à l'extérieur du fluide chargé par rapport à la surface de la particule.

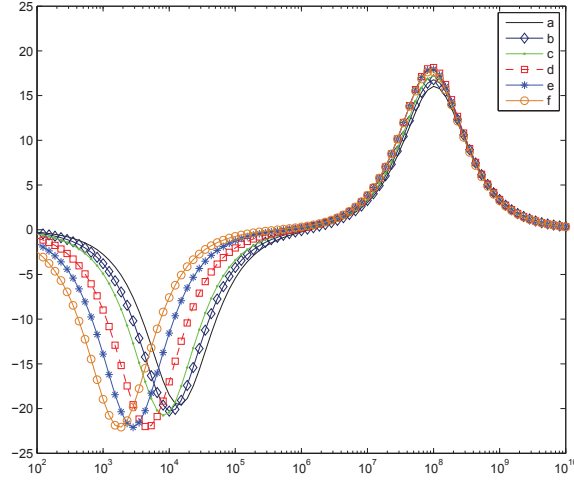


FIGURE 4.9 – Vitesse avec le modèle de dipôle équivalent intégrant l'effet de la diffusion. $E_0 = 12000\text{V/m}$, $\eta = 10^{-3}\text{Pas}$, $D_e = D_w = D_i = 2 \times 10^{-9}\text{m}^2/\text{s}$, $\varepsilon_i = 80$, $\varepsilon_m = 10$, $\varepsilon_w = 80$, $\sigma_w = 10^{-3}\text{S/m}$, $R_2 - R_3 = 6 \times 10^{-9}\text{m}$, $R_2 = 5 \times 10^{-6}\text{m}$. (a) $\sigma_i = \sigma_e = 10^{-3}\text{S/m}$, (b) $\sigma_i = 10^{-2}\text{S/m}$, $\sigma_e = 10^{-3}\text{S/m}$, (c) $\sigma_i = 10^{-2}\text{S/m}$, $\sigma_e = 10^{-4}\text{S/m}$. (c), (d) et (e) correspondent au cas classique sans effets électrocinétiques relatifs à (a), (b) et (c) respectivement.

La figure (4.9) présente quelques spectres d'électrorotation obtenus en utilisant ces nouvelles expressions qui incluent donc les effets électro-osmotiques. On note des différences importantes dans les fréquences caractéristiques et dans l'amplitude des pics dues à l'introduction des effets électrocinétiques. Deux causes principales peuvent être mises en avant, la modification du coefficient dipolaire et les effets du flux électro-osmotique :

- la modification du coefficient dipolaire est une conséquence des distributions de charge induites sur les deux côtés de la membrane. La membrane se comporte alors comme si elle était plus épaisse avec une capacité diminuée. Par conséquence le pic négatif se décale vers les fréquences supérieures, ce qui conduit à une réduction d'amplitude de ce même pic.
- d'autre part, pour les hautes fréquences, les effets de la diffusion ont peu d'influence sur le comportement du système car l'épaisseur des distributions de charge induites sont faibles par rapport au rayon de la particule et le flux électro-osmotique peut alors être négligé.

4.4.2.2 Modèle avec charges fixes

La modélisation des particules avec une surface épaisse chargée, comme c'est le cas de certaines particules colloïdales entourées par une enveloppe de polyélectrolyte [Ohshima 1993], ou le cas de cellules biologiques entourées par une membrane isolante et une paroi cellulaire perméable chargée, nécessite de prendre en compte les charges fixes présentes dans la particule. Le cas des cellules biologiques est particulièrement ciblé dans cette partie. Ici une cellule est modélisée par une particule sphérique conductrice entourée par une enveloppe non conductrice représentant la membrane cellulaire, le tout étant entourée par une couche externe uniformément chargée représentant la paroi cellulaire (figure 4.8). Cette dernière couche est généralement composée de matériaux poreux qui autorise le passage des ions entre les milieux interne et externe, ce qui permet de la considérer en équilibre avec le milieu externe. La valence des ions est alors considérée identique dans les deux milieux. La conductivité de la membrane est considérée comme nulle⁵. Il s'ensuit que les interfaces $r = R_2$ et $r = R_1$ sont imperméables aux ions. Pour des raisons de commodité, seulement deux types d'ions sont considérés pour chaque milieu conducteur.

Mise en oeuvre du modèle complet

Avec les hypothèses précédentes, le nouveau problème à considérer met en oeuvre les mêmes équations que dans le cas sans charges fixes en intégrant des termes représentant la densité et la concentration des charges fixes dans la paroi de la particule. Le potentiel électrique et les concentrations ioniques sont alors obtenus en résolvant le système donné par :

- l'équation de Laplace dans la membrane

$$\Delta\Phi(\mathbf{r}, t) = 0, \quad R_3 < r < R_2 \quad (4.62)$$

- l'équation de Poisson dans le milieu interne, la paroi cellulaire, et le milieu externe

$$\Delta\Phi(\mathbf{r}, t) = -\frac{1}{\varepsilon_0\varepsilon_j} \left(\rho_j + I(r) \underbrace{z_j^f C^f}_{\rho_f} \right), \quad 0 < r < R_3, R_2 < r, j = e, i \quad (4.63)$$

avec $I(\mathbf{r})$ égale à 1 dans le milieu externe de la particule et 0 ailleurs, et

$$\rho_j = \frac{e}{\varepsilon_0\varepsilon_j} \left(z_j^+ C^+(\mathbf{r}, t) + z_j^- C^-(\mathbf{r}, t) \right)$$

5. Cette hypothèse n'est pas strictement vraie pour les particules biologiques en général, mais elle approche assez raisonnablement le cas des cellules vivantes où la conductivité de la membrane est en général très faible.

- les équations de Nerst-Planck dans le milieu interne, la paroi cellulaire et le milieu externe

$$j^\pm(\mathbf{r}, t) = -D_j^\pm \nabla C^\pm(\mathbf{r}, t) - Z^\pm C^\pm(\mathbf{r}, t) \nabla \Phi + C^\pm(\mathbf{r}, t) \mathbf{u}(\mathbf{r}, t), \quad 0 < r < R_3, \quad R_2 < r, \quad j = e, w, i \quad (4.64)$$

avec

$$Z^\pm = \frac{e z_j^\pm D_j^\pm}{kT} \quad (4.65)$$

- les équations de continuité dans le milieu interne, la paroi cellulaire et le milieu externe

$$\nabla \cdot j^\pm(\mathbf{r}, t) = -\frac{\partial C^\pm(\mathbf{r}, t)}{\partial t}, \quad 0 < r < R_3, \quad r > R_2, \quad j = e, w, i \quad (4.66)$$

- l'équation de Navier-Stokes dans le milieu externe

$$\eta \Delta \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) - \nabla p(\mathbf{r}, t) + \rho_m \left[\frac{\partial \mathbf{u}}{\partial t} + (\mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \cdot \nabla) \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) \right] = -\rho_e(\mathbf{r}, t) \nabla \Phi(\mathbf{r}, t), \quad r > R_3 \quad (4.67)$$

- l'équation de l'incompressibilité du fluide

$$\nabla \cdot \mathbf{u}(\mathbf{r}, t) = 0, \quad r > R_3 \quad (4.68)$$

La résolution du système précédent est effectuée avec les conditions aux bords liées au problème : la continuité du potentiel dans l'espace, la continuité de la composante normale du déplacement, le potentiel à l'infini défini par le champ électrique appliqué, la symétrie du potentiel d'équilibre (sans champ appliqué), la continuité de la composante normale des flux des ions à l'interface externe de la paroi, la composante radiale de la vitesse constante à l'infini, la condition de non-glissement de la solution électrolytique à l'interface externe de la paroi, l'imperméabilité de la paroi à la solution, et l'équilibre des forces agissant sur la particule.

Comme le champ électrique est relativement faible, la dynamique du système considéré est étudiée en prenant en compte le comportement de la double couche électrique sous la forme d'une perturbation de l'état d'équilibre du système induite par le champ appliqué. A l'équilibre, le potentiel électrique et la concentration sont données par :

$$\Delta \Phi_0(r) = -\frac{e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_j kT} (z^+ C_0^+(r) + z^- C_0^-(r)) + h(r) \frac{e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_j kT} z^f C^f, \quad 0 < r < R_3, \quad R_2 < r, \quad j = e, i \quad (4.69)$$

où $h(\mathbf{r})$ est égale à 1 sur la paroi (*i.e.* $R_3 < r < R_2$) et 0 ailleurs. Dans la membrane

$$\Delta \Phi_0(r) = 0, \quad R_3 < r < R_2 \quad (4.70)$$

avec

$$C_0^\pm(r) = \begin{cases} c_\infty^\pm e^{(-z_e^\pm \Phi_0(r))}, & r > R_2 \\ c_{i0}^\pm e^{(-z_e^\pm \Phi_0(r))}, & 0 < r < R_2 \end{cases} \quad (4.71)$$

où $c_\infty^\pm$ et $c_{i0}^\pm$ sont les concentrations des ions positifs et négatifs respectivement dans l'électrolyte loin de la double couche électrique (zone électroneutre) et dans le milieu interne.

La résolution numérique du système (4.62 - 4.68) permet de calculer la contribution électro-osmotique à la vitesse d'électro-rotation donnée par (4.53) avec :

$$\hat{\Phi}(\mathbf{r}, t) = \Phi(\mathbf{r}, t) - \Phi_0(r) \quad (4.72)$$

$$\hat{C}^\pm(\mathbf{r}, t) = C^\pm(\mathbf{r}, t) - C_0^\pm(r) \quad (4.73)$$

Résultats numériques

La résolution du système précédent est réalisée en utilisant la méthode des éléments finis mise en oeuvre avec Comsol Multiphysics 4.2. Les paramètres utilisés sont donnée dans le tableau 4.4.2.2.

Paramètres utilisés dans les figure 4.10,4.11 et les figures qui suivent.

$R_1 = 1,5 \times 10^{-6}$	$z_e^\pm = z_i^\pm = \pm 1$	$\rho^m = 1.2 \times 10^3 \text{kg/m}^3$
$R_2 - R_3 = 5 \times 10^{-8}$	$D_e^\pm = D_i^\pm = D_i^\pm =$	$\eta = 8.904 \times 10^4 \text{Pas}$
$R_3 - R_2 = 50 \times 10^{-8}$	$2 \times 10^{-9} \text{m}^2/\text{s}$	$T = 298.4K$
$\varepsilon_e = 77.8\varepsilon_0$	$z^f = 1$	$E = 1000V/\text{m}$
$\varepsilon_m = 4$		
$\varepsilon_i = 70$		
$\sigma_i = 0.5S/\text{m}$		
$\sigma_e = 7 \times 10^{-4}S/\text{m}$		

Les figures suivantes présentent les évolutions de la concentration et du potentiel électrique à différents instants dans le cycle de rotation du champ électrique tournant, pour une espèce d'ions.

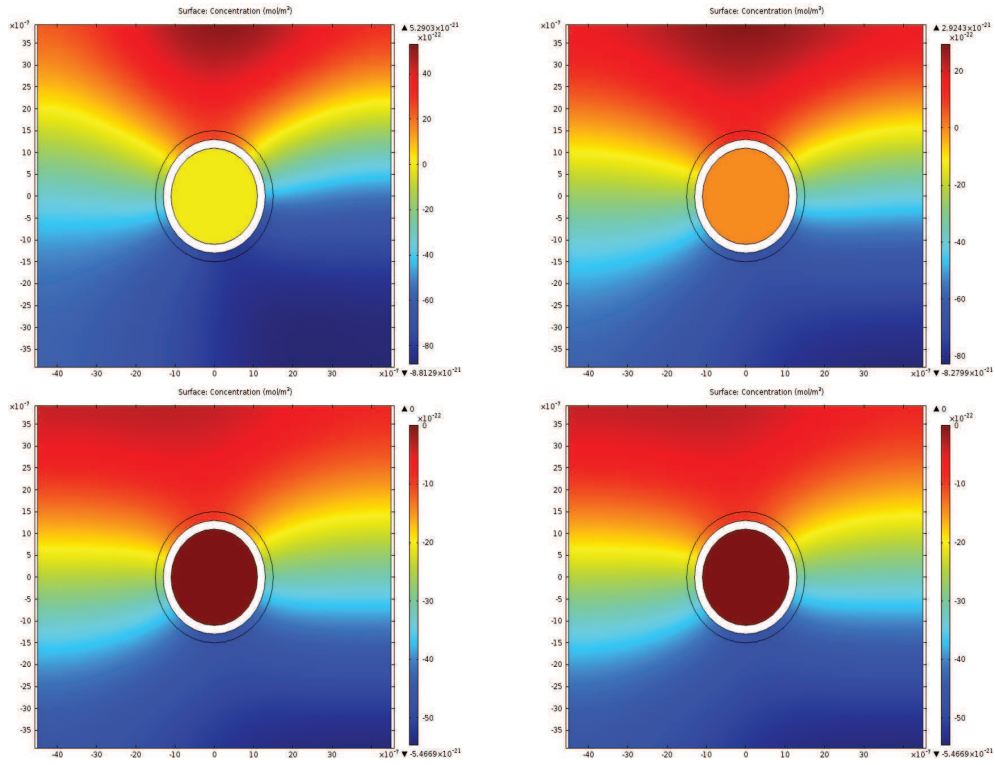


FIGURE 4.10 – Evolution de la concentration pour des valeurs de temps extraites d'un tour complet du champ électrique

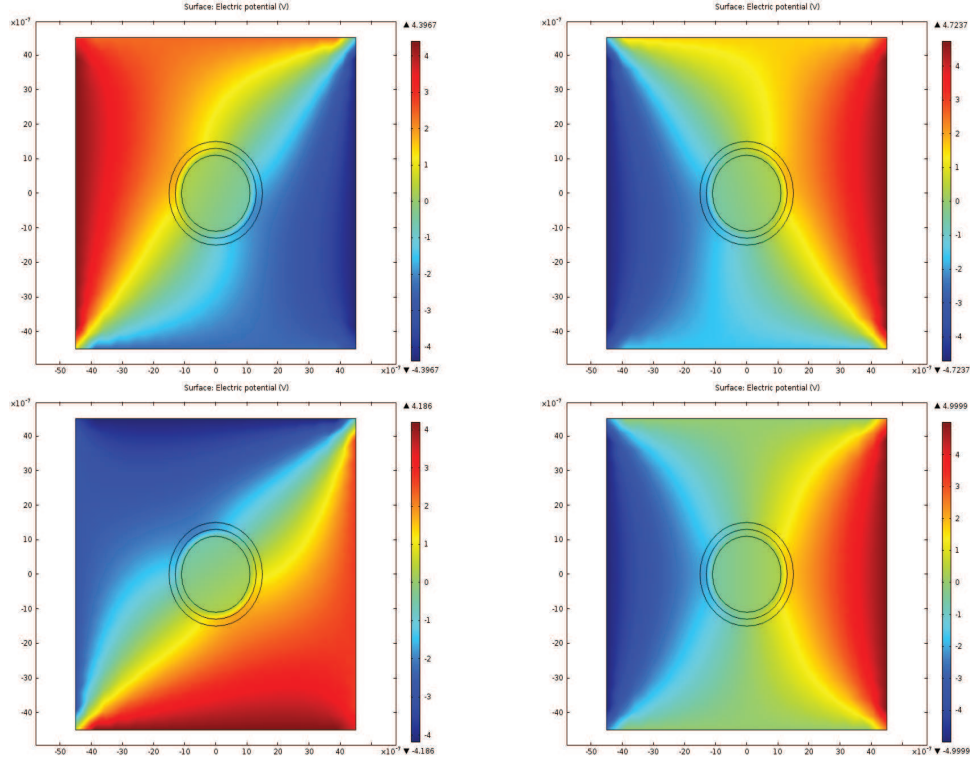


FIGURE 4.11 – Evolution du potentiel électrique V pour des valeurs du temps extrêmes d'un tour complet du champ électrique

A partir des résultats obtenus pour la concentration et le potentiel on calcule la vitesse d'électrotation selon (4.53). La figure (4.12) présente les vitesses calculées pour différents paramètres de la particule et de son milieu de suspension et pour différentes valeurs de l'épaisseur de la double couche électrique ((4.4.2.2)). La figure (4.13) montre comment cette vitesse varie pour différentes valeurs caractéristiques de la paroi chargée et de la double couche électrique, notamment le potentiel zéta.

	$\kappa_e R_1$	C^f
a	4	10^{20}
b	12	10^{20}
c	50	10^{21}
d	50	10^{22}
e	100	10^{22}
f	150	10^{23}

TABLE 4.1 – Tableau des paramètres électriques de la particule (de rayon $R = 10^{-5}$) et du milieu de suspension

Comme prévu les différents spectres calculés coïncident assez bien dans la région des hautes fréquences, puisque la fréquence caractéristique de la dispersion de Maxwell-

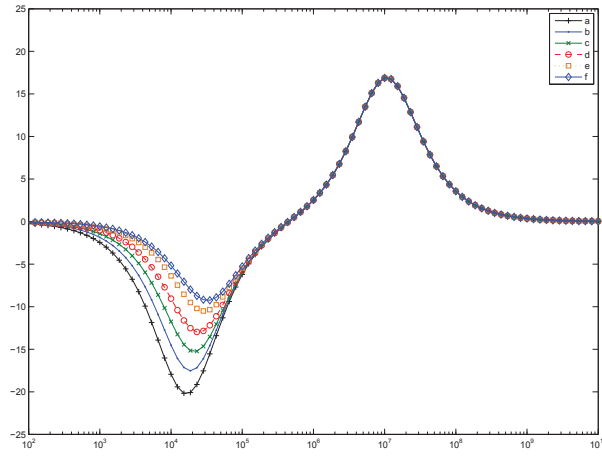


FIGURE 4.12 – vitesse d'électrorotation calculée avec le modèle électrocinétique incluant la contribution électro-osmotique, avec les paramètres du tableau 4.4.2.2

Wagner est essentiellement déterminée par la conductivité la plus élevée dans le système, qui est dans notre cas celle du milieu interne. D'autre part, l'amplitude ne change pas non-plus, puisqu'elle ne dépend pas de la conductivité pour des cas de conductivités très importante du milieu interne. Par ailleurs, quand la membrane (supposée isolante) est entourée par une paroi très conductrice (provenant d'une valeur importante de densité de charge fixe), le processus de dispersion est moins important et l'amplitude du pic est atténuée. L'épaisseur de la double couche électrique en revanche a un impact qui décale la fréquence caractéristique du pic vers des valeurs supérieures.

	$R_1 - R_2$	κR_1	C^f
<i>a</i>	1000	20	10^{20}
<i>b</i>	700	50	10^{20}
<i>c</i>	500	50	10^{21}
<i>d</i>	100	100	10^{22}
<i>e</i>	70	150	10^{23}
<i>f</i>	50	200	10^{24}

TABLE 4.2 – Tableau des paramètres électriques de la particule (de rayon $R = 10^{-5}$) et du milieu de suspension

A partir des données obtenues avec cette configuration, quelques remarques peuvent être déduites :

- Le potentiel zêta semble avoir plus d'effet sur l'amplitude du pic que sur la fréquence caractéristique correspondante.
- Quel que soit l'épaisseur de la DCE, l'effet de l'épaisseur de la paroi paraît

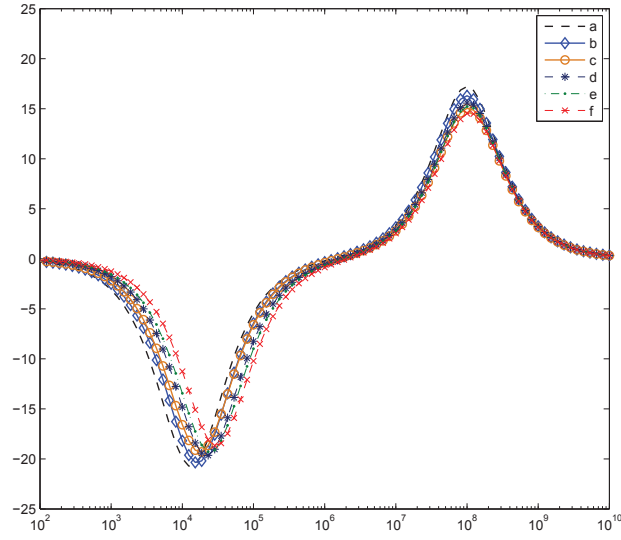


FIGURE 4.13 – Vitesse de rotation globale avec les paramètres du tableau 4.4.2.2.

limitée mais non négligeable, surtout quand celle-ci est plus conductrice (par la présence de densité de charges fixes plus grande).

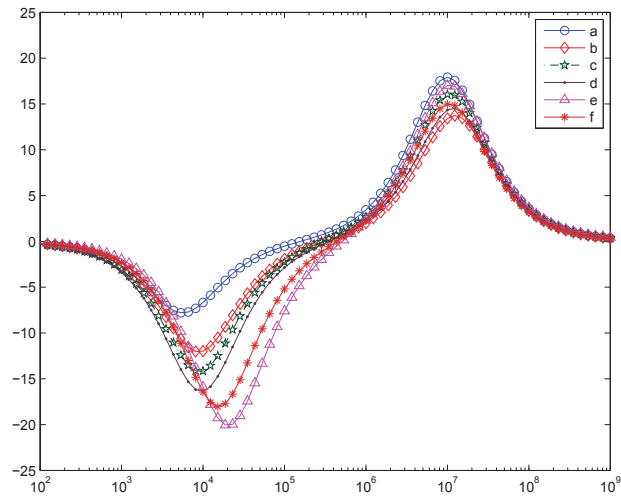


FIGURE 4.14 – Composante Vitesse de rotation globale avec les paramètres du tableau 4.4.2.2.

Quand C^f augmente l'amplitude du pic négatif diminue et la fréquence caractéristique se positionne dans des valeurs (fréquences) plus élevées. Cet effet est cohérent avec les résultats issus du modèle homogène équivalent (4.61), qui prévoit la même

	$R_1 - R_2$	ζ	C^f
a	100	-223	10^{20}
b	100	-163	10^{22}
c	100	-120	10^{23}
d	100	-120	10^{24}
e	50	-60	10^{25}
f	50	-10	10^{26}

TABLE 4.3 – Tableau des paramètres électriques de la particule (de rayon $R = 10^{-5}$) et du milieu de suspension.

tendance due à l'effet de la conductivité surfacique quand celle-ci augmente.

Les résultats obtenus dans les figures (fig. 4.13) et (fig. 4.14) montrent une dépendance similaire au conductivité du milieu interne et l'épaisseur de la paroi cellulaire. Cependant la fréquence caractéristique est déplacée vers des valeurs supérieures quand l'épaisseur du double couche électrique est moindre.

La traduction de ces effets sur le comportement diélectrique de la particule peut être étudié en utilisant les valeurs caractéristiques données dans 4.3.2.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous nous sommes intéressés aux mécanismes qui gouvernent les phénomènes interfaciaux, en particulier le comportement des charges dans les électrolytes ioniques et à l'interface entre la particule et son milieu fluide de suspension. Les effets dus à la formation de la double couche électrique ont été mis en évidence, notamment dans le phénomène d'électrorotation. Après avoir présenté des modèles reliant cette dernière aux données à l'interface particule-electrolyte, nous avons abordé la question de la modification de la conductivité surfacique, notamment avec le modèle de Dukhin. Son effet a été relié aux valeurs caractéristiques du spectre d'électrorotation. L'effet électrocinétique principal dans le phénomène d'électrorotation étant la naissance d'un mouvement électro-osmotique qui s'ajoute au mouvement initial de la particule dû à son comportement purement diélectrique. Sa contribution a été modélisée pour différentes situations (présence de paroi, avec ou sans charges fixes). Enfin nous avons modélisé le problème complet d'une particule sphérique chargée, plongée dans un milieu de suspension, et soumise à un champ tournant. La résolution de ce problème couplé par éléments finis a montré la pertinence de l'approche développée, notamment pour les basses fréquences.

Bibliographie

[Delgado 2007] A.V. Delgado, F. Gonzalez-Caballerolez-Caballero, R.J. Hunter, L.K. Koopal et J. Lyklema. *Measurement and interpretation of electroski-*

- netic phenomena*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 309, no. 2, pages 194 – 224, 2007. Elkin 06, International Electrokinetics Conference, June 25-29, Nancy, France. (Cité en page 95.)
- [Grosse 1998] Constantino Grosse et Vladimir Nikolaievich Shilov. *Theory of the low frequency electrorotation of disperse particles in electrolyte solution*. Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects, vol. 140, no. 1, pages 199–207, 1998. (Cité en pages 95, 104 et 105.)
- [Holzapfel 1982] C. Holzapfel, J. Vienken et U. Zimmermann. *Rotation of cells in an alternating electric field theory and experimental proof*. The Journal of Membrane Biology, vol. 67, pages 13–26, 1982. (Cité en pages 16 et 99.)
- [Hughes 2003] M.P. Hughes. *Nanoelectromechanics in engineering and biology*. Nano- and microscience, engineering, technology, and medicine series. CRC Press, 2003. (Cité en pages 20, 59 et 103.)
- [Kissa 1999] Erik Kissa. *Dispersions : characterization, testing, and measurement*, volume 84. CRC Press, 1999. (Cité en page 93.)
- [Lyklema 1995] J. Lyklema. *Fundamentals of interface and colloid science : Solid-liquid interfaces*. vol2. Academic Press, 1995. (Cité en pages 24, 93, 95 et 105.)
- [Lyklema 2001] J Lyklema. *Surface conduction*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 13, no. 21, page 5027, 2001. (Cité en page 96.)
- [Ohshima 1993] Hiroyuki Ohshima et Tamotsu Kondo. *Electrophoretic mobility of a soft particles with a nonuniformly charged surface layer as a model for cells*. Biophysical Chemistry, vol. 46, no. 2, pages 145 – 152, 1993. (Cité en pages 109, 135 et 136.)
- [Ohshima 2010] Hiroyuki Ohshima. *Electrophoretic mobility of soft particles*, pages 431–467. John Wiley & Sons, Inc., 2010. (Cité en pages 107 et 120.)
- [Schnelle 1999] Thomas Schnelle, Torsten Müller, Stefan Fiedler et Günter Fuhr. *The influence of higher moments on particle behaviour in dielectrophoretic field cages*. Journal of Electrostatics, vol. 46, no. 1, pages 13–28, Mars 1999. (Cité en pages 56, 64, 72 et 99.)
- [Shilov 2001] VN Shilov, AV Delgado, F Gonzalez-Caballero et C Grosse. *Thin double layer theory of the wide-frequency range dielectric dispersion of suspensions of non-conducting spherical particles including surface conductivity of the stagnant layer*. Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects, vol. 192, no. 1, pages 253–265, 2001. (Cité en page 96.)
- [Zimmerman 1999] Viviana Zimmerman, Constantino Grosse et Vladimir Nikolaievich Shilov. *Contribution of electro-osmosis to electrorotation spectra in the frequency range of the β dispersion*. Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects, vol. 159, no. 2, pages 299–309, 1999. (Cité en page 104.)
- [Zimmermann 1996] Ulrich Zimmermann et Garry A. Neil. *Electromanipulation of Cells*. CRC-Press, 1 édition, Avril 1996. (Cité en pages 12, 20, 97 et 132.)

Conclusion et perspectives

Dans ce travail de thèse, nous nous sommes intéressés à l'interaction champ électrique-particule diélectrique dans les phénomènes diélectrophorétiques, en vue de leur application à la manipulation de cellules biologiques. La compréhension de ces phénomènes nécessitant une modélisation complète des mécanismes de polarisation qui régissent l'interaction champ-particule, nous avons donc développé et mis en oeuvre des modèles électromécanique et électrocinétique. Parmi les principaux résultats que nous avons obtenus, nous pouvons en mettre trois principaux en avant :

- La construction d'un modèle multipolaire pour représenter la polarisation d'une particule diélectrique soumise à un champ électrique extérieur. Nous avons montré que, si le développement multipolaire peut se réduire au premier ordre pour le cas d'une particule sphérique plongée dans un champ uniforme, les ordres supérieurs sont nécessaires pour les particules non sphériques. Nous avons également montré comment un processus d'homogénéisation permet d'étudier les configurations multicouches de particules avec cette approche.
- La pertinence de l'approche multipolaire pour calculer la force et le couple exercés sur une particule dans des situations où le champ appliqué présente de fortes non-uniformités, l'approche dipolaire classique se révélant beaucoup moins performante dans ce cas.
- L'importance de la prise en compte de la double couche électrique dans les effets électrocinétiques induits sur une particule diélectrique immergée dans un milieu électrolytique. Nous avons ainsi modélisé le problème complet d'une particule sphérique chargée plongée dans un milieu de suspension et soumise à un champ tournant, en prenant en compte des phénomènes électrocinétiques, notamment les effets électro-osmotiques. La résolution de ce problème couplé par éléments finis a montré la pertinence de l'approche développée, notamment pour les basses fréquences.

Les principales perspectives de ce travail consistent dans un premier temps à intégrer le modèle multipolaire pour exprimer la force dans le calcul des effets électrocinétiques développés au chapitre 4. Une des conséquences directes du modèle présenté dans ce dernier chapitre est de permettre l'amélioration de l'approche classique d'identification des paramètres électriques des particules par problème inverse. Ceci sera rendu possible en utilisant le spectre d'électrorotation obtenu en prenant en compte les phénomènes électrocinétiques tels que l'électro-osmose. Nous avons en effet mis en évidence leur importance à l'échelle des basses fréquences.

Par ailleurs, l'extension du modèle présentée au cas des particules non-sphériques aura tout son intérêt. Ceci nécessitera de développer une approche numérique pour déterminer la contribution électro-osmotique pour ce cas.

D'autre part, le modèle de cellule avec paroi, tel que vu dans ce travail, est un

premier pas vers une modélisation plus réaliste des cellules biologiques. Néanmoins, le fait que celles-ci soient considérées comme des particules rigides limite sa validité pour plusieurs types de cellules. Il sera donc nécessaire d'améliorer ce modèle en considérant la représentation de la cellule biologique par une particule non-rigide⁶. Une voie dans ce sens a été développée récemment avec le modèle d'Ohshima [Ohshima 2010, Makino 2011].

Dans les situations où l'on s'intéresse à l'étude d'une suspension de cellules biologiques, l'approche multipolaire traitée dans ce travail pourra être adaptée aussi bien pour le calcul des effets électromécaniques de la suspension que celui des interactions mutuelles des particules la composant, cas dans lequel la méthode présente tout son intérêt.

6. "Soft particle" en anglais

Annexes

Polynômes et fonctions de Legendre associées

Solutions de symétrie azimuthale de l'équation de Laplace : polynômes de Legendre

La construction de solutions de symétrie azimuthale de l'équation de Laplace correspond au cas $m = 0$ dans le développement ((2.11), (2.12)) où la solution est indépendante de la variable φ . L'équation (2.13) se réduit dans ce cas à l'équation dite de Legendre :

$$((1 - x^2) y')' + \lambda y = 0. \quad (\text{A.1})$$

La solution de cette équation différentielle est donnée par une série polynomiale qui converge pour $\lambda = n(n+1)$ avec n entier naturel et les fonctions propres associées v des polynômes en s de degré n . Les solutions de l'équation de Legendre (2.13) sont notées $P_n(x)$ et sont les polynômes de Legendre. Leurs expressions pour les premiers ordres ($n \leq 4$) sont données par :

$$\begin{aligned} P_0(x) &= 1, & P_1(x) &= x, & P_2(x) &= \frac{1}{2}(3x^2 - 1), \\ P_3(x) &= \frac{1}{2}(5x^3 - 3x), & P_4(x) &= \frac{1}{8}(35x^4 - 30x^2 + 3). \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Les fonctions $\Theta(\theta)$ de (2.10) sont donc les polynômes de Legendre, $\Theta(\theta) = P_n(\cos \theta)$. Une façon de représenter ces polynômes est donnée par la formule de Rodrigues :

$$P_n(x) = \frac{1}{2^n n!} \frac{d^n}{dx^n} (x^2 - 1)^n. \quad (\text{A.3})$$

Pour la fonction radiale $R(r)$ donnée par (2.9), il est facile de voir qu'avec $\lambda = n(n+1)$, les deux solutions indépendantes sont :

$$R \sim r^{n+1}, \quad \text{et} \quad R \sim r^{-n}. \quad (\text{A.4})$$

Par conséquent, la solution de symétrie azimuthale la plus générale de l'équation de Laplace en coordonnées sphériques s'écrit :

$$U(r, \theta) = \sum_{n \geq 0} (A_n r^n + B_n r^{-n-1}) P_n(\cos \theta). \quad (\text{A.5})$$

avec A_n et B_n des constantes.

Solutions plus générales : fonctions de Legendre associées

L'équation de Legendre associée a des solutions régulières en $x = \pm 1$ si et seulement si n est un entier naturel et m un entier qui prend des valeurs $-n \leq m \leq n$. Les fonctions propres correspondantes sont les fonctions de Legendre associées $P_n^m(x)$ qui sont liées aux polynômes de Legendre (A.2) par :

$$P_n^m(x) = (-1)^m (1-x^2)^{m/2} \frac{d^m}{dx^m} P_n(x), \quad (\text{A.6})$$

Finalement, les fonctions P_n^m sont donc données par la formule :

$$P_n^m(x) = \frac{(-1)^m}{2^n n!} (1-x^2)^{m/2} \frac{d^{n+m}}{dx^{n+m}} (x^2-1)^n, \quad (\text{A.7})$$

Il est facile de montrer que ces fonctions ont les deux propriétés suivantes :

$$P_n^{-m}(x) = (-1)^m \frac{(n-m)!}{(n+m)!} P_n^m(x), \quad (\text{A.8})$$

$$\int_{-1}^1 P_n^m(x) P_{n'}^m(x) dx = \frac{2}{2n+1} \frac{(n+m)!}{(n-m)!} \delta_{nn'}, \quad (\text{A.9})$$

où δ désigne le symbole de Kronecker. Ces fonctions sont utilisées dans la suite pour définir les harmoniques sphériques.

Modèle multicouche

Considérons une particule sphérique représentée par deux sphères concentriques de rayon R_1 et R_2 (fig. B.1), avec une permittivité de la sphère interne ε_3 et une permittivité de la couche uniforme qui l'entoure ε_2 , la permittivité du milieu extérieur étant ε_1 .

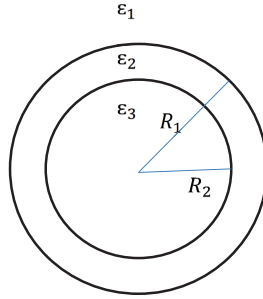


FIGURE B.1 – Modèle double-couche sphérique

Particule sphérique multicouche dans un champ uniforme

Supposons que la particule est soumise à un champ uniforme $\mathbf{E}_0 = E_0 \mathbf{z}$. L'expression du potentiel électrostatique dans chacune des trois régions du problème est donnée par :

$$U_1 = \left(-E_0 r + \frac{B}{r^2} \right) \cos \theta, \quad r \geq R_1 \quad (\text{B.1})$$

$$U_2 = \left(-Cr + \frac{D}{r^2} \right) \cos \theta, \quad R_1 \geq r \geq R_2 \quad (\text{B.2})$$

$$U_3 = -Ir \cos \theta, \quad R_2 \geq r \quad (\text{B.3})$$

En utilisant les conditions de transmission aux deux interfaces $r = R_1$ et $r = R_2$:

$$U_1 = U_2 \text{ et } \varepsilon_1 \frac{\partial U_1}{\partial r} = \varepsilon_2 \frac{\partial U_2}{\partial r}, \quad \text{en } r = R_1 \quad (\text{B.4})$$

$$U_2 = U_3 \text{ et } \varepsilon_2 \frac{\partial U_2}{\partial r} = \varepsilon_3 \frac{\partial U_3}{\partial r}, \quad \text{en } r = R_2 \quad (\text{B.5})$$

on obtient les constantes B , C , D et I :

$$\begin{aligned} B &= -\frac{\varepsilon'_2 - \varepsilon_1}{\varepsilon'_2 + 2\varepsilon_1} R_1^3 E_0, & C &= -\frac{3\varepsilon_1 a^3}{(\varepsilon'_2 + 2\varepsilon_1)(a^3 - K)} E_0 \\ D &= -\frac{3\varepsilon_1 K R_1^3}{(\varepsilon'_2 + 2\varepsilon_1)(a^3 - K)} E_0, & I &= -\frac{3\varepsilon_1(1 - K)a^3}{(\varepsilon'_2 + 2\varepsilon_1)(a^3 - K)} E_0 \end{aligned}$$

avec $(\varepsilon_2)'$ donnée par (2.62).

Particule sphérique multicouche dans un champ non-uniforme

Supposons que la particule est soumise à une champ non uniforme $\mathbf{E}_0 = E_0 \mathbf{z}$. L'expression du potentiel électrostatique dans chacune des trois régions du problème est donnée par :

$$U_1 = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n A_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \frac{B_{n,m} \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi)}{r^{n+1}}, \quad r \geq R_1 \quad (\text{B.6})$$

$$U_2 = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n C_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi) + \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n \frac{D_{n,m} \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi)}{r^{n+1}}, \quad R_1 \geq r \geq R_2 \quad (\text{B.7})$$

$$U_3 = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=-n}^n I_{n,m} r^n \mathcal{Y}_n^m(\theta, \varphi), \quad R_2 \geq r \quad (\text{B.8})$$

En utilisant les conditions aux limites en $r = R_1$ (B.4) et $r = R_2$ (B.5) et en prenant en compte le fait qu'il ne doit pas y avoir de singularité à l'origine, on obtient les constantes $B_{n,m}, C_{n,m}, D_{n,m}$ et $I_{n,m}$ en fonction des données du champ appliqué $A_{n,m}$:

$$B_{n,m} = -\frac{n[(\varepsilon_2)'_n - \varepsilon_1]}{n(\varepsilon_2)'_n + (n+1)\varepsilon_1} R_1^{2n+1} A_{n,m} \quad (\text{B.9})$$

$$C_{n,m} = \frac{(2n+1)\varepsilon_1 R_2^{-2n+1}}{(n(\varepsilon_2)'_n + (n+1)\varepsilon_1)(a^{2n+1} - nK^{(n)})} A_{n,m} \quad (\text{B.10})$$

$$D_{n,m} = -\frac{n(2n+1)\varepsilon_1 K^{(n)}}{(n(\varepsilon_2)'_n + (n+1)\varepsilon_1)(a^{2n+1} - nK^{(n)})} A_{n,m} \quad (\text{B.11})$$

$$I_{n,m} = -\frac{(2n+1)\varepsilon_1(1 - nK^{(n)})R_2^{-(2n+1)}}{(n(\varepsilon_2)'_n + (n+1)\varepsilon_1)(a^{2n+1} - nK^{(n)})} A_{n,m} \quad (\text{B.12})$$

avec

$$(\varepsilon_2)'_n = \varepsilon_2 \frac{a^{(2n+1)} + (n+1)K^{(n)}}{a^{(2n+1)} - nK^{(n)}} \quad (\text{B.13})$$

Modèle multicouche ellipsoïdal

Dans de nombreuses situations de DEP expérimentale, les cellules traitées ont une géométrie allongée et l'évaluation du moment dipolaire de la particule entourée par des couches n'est pas aussi simple que dans le cas sphérique. Généralement ce type de cellules est modélisé par des géométries ellipsoïdales, comme c'est le cas notamment des globules rouges approchés par des ellipsoïdes aplatis d'excentricité importante.

L'introduction d'un système de coordonnées ellipsoïdales en supposant que la surface extérieure est un ellipsoïde de semi-axes, a_0 , b_0 et c_0 , permet de générer une structure d'ellipsoïdes concentriques (couches concentriques) avec une épaisseur des couches qui est non uniforme [Stratton 1941, Sokirko 1992, Asami 1980] :

$$[x^2/(a_0^2 + \xi)] + [y^2/(b_0^2 + \xi)] + [c^2/(c_0^2 + \xi)] = 1, \quad (\text{B.14})$$

où ξ est un paramètre représentant une famille de surfaces d'ellipsoïdes concentriques [Stratton 1941].

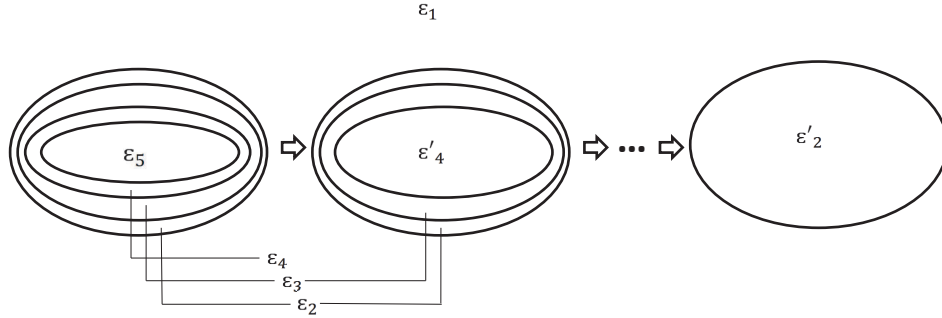


FIGURE B.2 – Illustration de la méthode "smeard-out" pour une structure d'ellipsoïdes confocales (Coupe 2D)

De façon similaire au cas de la particule multicouche sphérique, le processus "smeard-out" permet d'obtenir la permittivité équivalente pour un ellipsoïde à plusieurs couches ($n \geq 2$) (fig.B.2). Par résolution de l'équation de Laplace en coordonnées ellipsoïdales avec des conditions aux limites correspondant à la continuité de la composante normale de potentiel et la densité du vecteur déplacement au niveau des interfaces [Stratton 1941], la permittivité équivalente est donnée par ses composantes ($k = x, y, z$) par :

$$\varepsilon'_{1k} = \varepsilon_1 \frac{\varepsilon_1 + (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)[A_{1k} + \nu_1(1 - A_{0k})]}{\varepsilon_1 + (\varepsilon_2 - \varepsilon_1)(A_{1k} - \nu_1 A_{0k})} \quad (\text{B.15})$$

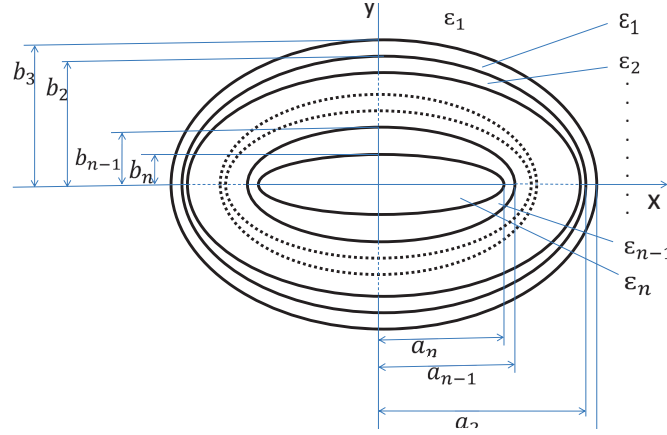


FIGURE B.3 – Structure multicouche d'ellipsoïdes confocales (Coupe 2D)

avec

$$\varepsilon'_{ik} = \varepsilon_i \frac{\varepsilon_i + (\varepsilon'_{i+1} - \varepsilon_i)[A_{ik} + \nu_i(1 - A_{i-1,k})]}{\varepsilon_i + (\varepsilon'_{i+1} - \varepsilon_i)(A_{ik} - \nu_i A_{i-1,k})} \quad i = 1, 2, \dots, n-1 \quad (\text{B.16})$$

et

$$\varepsilon'_{n-1,k} = \varepsilon_{n-1} \frac{\varepsilon_{n-1} + (\varepsilon_n - \varepsilon_{n-1})[A_{n-1,k} + \nu_{n-1}(1 - A_{n-2,k})]}{\varepsilon_{n-1} + (\varepsilon_n - \varepsilon_{n-1})(A_{n-1,k} - \nu_{n-1} A_{n-2,k})} \quad (\text{B.17})$$

$$\nu_i = \frac{a_i b_i c_i}{a_{i-1} b_{i-1} c_{i-1}} \quad i = 1, 2, \dots, n-1 \quad (\text{B.18})$$

est une quantité purement géométrique.

Les w_{ik} désigne a_i, b_i et c_i pour $k = x, y, z$ et $R_i = [(a_i^2 + \xi)(b_i^2 + \xi)(c_i^2 + \xi)]^{1/2}$ et les A_{ik} sont les facteurs de dépolarisation suivant $k = x, y$ et z et sont donnés par :

$$A_{ik} = \frac{1}{2} a_i b_i c_i \int_0^\infty \frac{d\xi}{(w_{ik} + \xi) R_i} \quad (\text{B.19})$$

Notons que ces coefficients dépendent de la géométrie de la particule et qu'ils prennent tous une seule valeur dans le cas particulier sphérique. Le second terme dans les crochets de (B.15) représente la perturbation du champ extérieur causée par la présence de l'ellipsoïde multicouche [Asami 1980].

Effets électromécaniques en quasi-statique

Force et couple quasi-statiques

Les phénomènes diélectrophorétiques impliquant une ou plusieurs particules dans leur microsystème se basent sur l'utilisation de systèmes d'électrodes soumises à des tensions continues ou alternatives. Pour les situations en quasi-statique, le champ généré par de telles électrodes peut être décrit par l'expression générale :

$$\overline{E}(\overline{x}, t) = \sum_{i=1}^3 E_{x_i}(\overline{x}) \cos[\omega t + \varphi_{x_n}(\overline{x})] \hat{x}_i \quad (C.1)$$

$$\overline{E}(\overline{x}, t) = \sum_{i=1}^3 E_{x_i}(\overline{x}) \cos[\omega t + \varphi_{x_n}(\overline{x})] \hat{x}_i \quad (C.2)$$

où $\overline{x} = (x_1, x_2, x_3)$ représente une variable d'espace, et les amplitudes $E_{x_1}, E_{x_2}, E_{x_3}$, et les composantes de phase $\varphi_{x_1}, \varphi_{x_2}, \varphi_{x_3}$ sont des fonctions de cette variable d'espace. Pour une particule sphérique de rayon r se situant dans un champ donné par (C.2), avec son centre positionné en un point de l'espace $\overline{x}$, le moment dipolaire effectif induit est donné par :

$$\overline{p}(\overline{x}, t) = 4\pi\epsilon_m \sum_{i=1}^3 E_{x_i} \{ \text{Re}[\underline{K}(\omega)] \cos(\omega t + \varphi_{x_i}) - \text{Im}[\underline{K}(\omega)] \sin(\omega t + \varphi_{x_i}) \} \hat{x}_i \quad (C.3)$$

Les expressions des moyennes temporelles de la force et du couple associés sont dans ce cas données par :

$$\langle \overline{F}(\overline{x}, t) \rangle = 2\pi\epsilon_m r^3 \left\{ \text{Re}[\underline{K}(\omega)] \nabla \left(\frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 E_{x_i}^2 \right) + \text{Im}[\underline{K}(\omega)] \left(\sum_{i=1}^3 E_{x_i}^2 \nabla \varphi_{x_n} \right) \right\} \quad (C.4)$$

et

$$\begin{aligned} \langle \overline{T}(\overline{x}, t) \rangle = & -4\pi\epsilon_m r^3 \text{Im}[\underline{K}(\omega)] \{ E_{x_2} E_{x_3} \sin(\varphi_{x_2} - \varphi_{x_3}) \hat{x}_1 \\ & + E_{x_3} E_{x_1} \sin(\varphi_{x_3} - \varphi_{x_1}) \hat{x}_2 + E_{x_1} E_{x_2} \sin(\varphi_{x_1} - \varphi_{x_2}) \hat{x}_3 \} \end{aligned} \quad (C.5)$$

Les géométries couramment utilisées pour modéliser les particules manipulées dans la pratique sont les géométries sphérique et ellipsoïdale [Miller 1993], non seulement pour la maniabilité des formulations analytiques qu'elles permettent, mais aussi pour l'approximation raisonnable qu'elles présentent, en particulier pour plusieurs types de particules biologiques étudiés en pratique. On s'intéresse ici au cas d'une particule de forme sphéroïdale.

Considérons donc une particule de forme sphéroïdale ayant son centre situé à une position $\overline{x_0}$. Pour quantifier les grandeurs électromécaniques associées à l'interaction de cette particule avec le champ extérieur, considérons un système de coordonnées locales (x_1, x_2, x_3) fixé sur la particule, et un autre de système de coordonnées (x'_1, x'_2, x'_3) fixé par rapport au système d'électrodes générant le champ auquel est soumise la particule considérée.

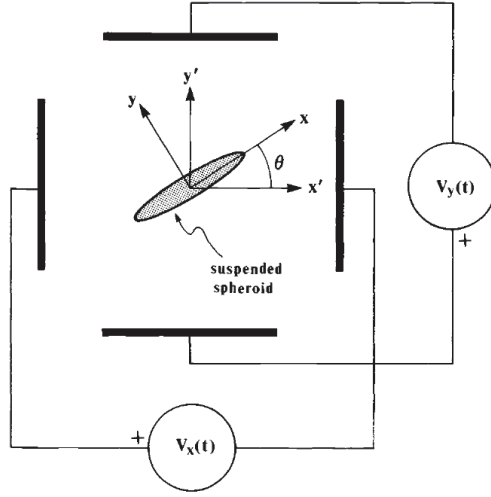


FIGURE C.1 – Représentation 2D d'une particule ellipsoïdale dans un champ électrique alternatif.

La force au centre de la particule et le couple sont donnés par :

$$\langle \overline{F}(\overline{x_0}, t) \rangle = 2\pi abc\epsilon_m \left\{ \sum_{i=1}^3 \left(\text{Re}[\underline{K}_i(\omega)] \nabla \left(\frac{1}{2} E_{x'_i}^2 \right) + \text{Im}[\underline{K}_i(\omega)] E_{x'_i}^2 \nabla \varphi_{x'_n} \right) \right\} \quad (\text{C.6})$$

ou K_i , ($i = 1, 2$ ou 3) représente la i^{me} composante du moment effectif dipolaire généralisé pour le cas non sphérique.

$$\langle \overline{T}(\overline{x_0}, t) \rangle = -2\pi abc\epsilon_m (E_{x'_2} E_{x'_3} T_1 \hat{x}'_1 + E_{x'_3} E_{x'_1} T_2 \hat{x}'_2 + E_{x'_1} E_{x'_2} T_3 \hat{x}'_3) \quad (\text{C.7})$$

avec

$$T_1 = (Im[\underline{K}_2(\omega)] + Im[\underline{K}_3(\omega)]) \sin(\varphi_{x'_2} - \varphi_{x'_3}) - (Re[\underline{K}_2(\omega)] - Re[\underline{K}_3(\omega)]) \cos(\varphi_{x'_2} - \varphi_{x'_3}) \quad (C.8)$$

$$T_2 = (Im[\underline{K}_3(\omega)] + Im[\underline{K}_1(\omega)]) \sin(\varphi_{x'_3} - \varphi_{x'_1}) - (Re[\underline{K}_3(\omega)] - Re[\underline{K}_1(\omega)]) \cos(\varphi_{x'_3} - \varphi_{x'_1}) \quad (C.9)$$

$$T_3 = (Im[\underline{K}_1(\omega)] + Im[\underline{K}_2(\omega)]) \sin(\varphi_{x'_1} - \varphi_{x'_2}) - (Re[\underline{K}_1(\omega)] - Re[\underline{K}_2(\omega)]) \cos(\varphi_{x'_1} - \varphi_{x'_2}) \quad (C.10)$$

Si tous les termes de phase sont nuls, les expressions de la force (C.6) et du couple (C.7) se réduisent respectivement à la force DEP classique (3.60) et au couple d'électro-orientation donné dans (??). En posant $E_1 = E_2 = \text{constante}$, $E_3 = 0$, $\varphi_1 - \varphi_2 = 90^\circ$, et $\varphi_3 = 0$, la force dans (C.6) est nulle et le couple dans (C.7) se réduit au couple d'electrorotation 3.61.

Expressions en terme du potentiel électrique

Pour un champ électrique généré par un système d'électrodes soumises à une excitation en courant alternatif, le potentiel électrique complexe dans le milieu est donné par :

$$\underline{U}(\bar{x}, t) = [U_{re}(\bar{x}) + iU_{im}(\bar{x})]e^{i\omega t} \quad (C.11)$$

avec les deux composantes réelle et imaginaire U_{re} et U_{im} vérifiant l'équation de Laplace avec conditions de bord appropriées. Le champ électrique correspondant est donné par :

$$\underline{E}(\bar{x}, t) = -Re[\nabla U_{re}^*(\bar{x}, t)] = \nabla U_{re}(\bar{x}, t) \cos \omega t + \nabla U_{im}(\bar{x}, t) \sin \omega t \quad (C.12)$$

$$\begin{aligned} \langle \bar{T}(\bar{x}, t) \rangle = & -4\pi\epsilon_m Im[\underline{K}(\omega)] \left\{ \left(\frac{\partial U_{im}}{\partial x_2} \frac{\partial U_{re}}{\partial x_3} - \frac{\partial U_{re}}{\partial x_2} \frac{\partial U_{im}}{\partial x_3} \right) \hat{x}_1 \right. \\ & \left. + \left(\frac{\partial U_{im}}{\partial x_3} \frac{\partial U_{re}}{\partial x_1} - \frac{\partial U_{re}}{\partial x_3} \frac{\partial U_{im}}{\partial x_1} \right) \hat{x}_2 + \left(\frac{\partial U_{im}}{\partial x_1} \frac{\partial U_{re}}{\partial x_2} - \frac{\partial U_{re}}{\partial x_1} \frac{\partial U_{im}}{\partial x_2} \right) \hat{x}_3 \right\} \end{aligned} \quad (C.13)$$

$$\begin{aligned} \langle \bar{F}(\bar{x}, t) \rangle = & 2\pi\epsilon_m r^3 \sum_{k=1}^3 \left\{ Re[\underline{K}(\omega)] \frac{1}{2} \frac{\partial}{\partial x_k} \left(\sum_{i=1}^3 \left[\left(\frac{\partial U_{re}}{\partial x_i} \right)^2 + \left(\frac{\partial U_{im}}{\partial x_i} \right)^2 \right] \right) \right. \\ & \left. + Im[\underline{K}(\omega)] \sum_{i=1}^3 \left(\frac{\partial^2 U_{im}}{\partial x_k \partial x_i} \frac{\partial U_{re}}{\partial x_i} - \frac{\partial U_{im}}{\partial x_i} \frac{\partial^2 U_{re}}{\partial x_k \partial x_i} \right) \right\} \hat{x}_i \end{aligned} \quad (C.14)$$

Electrorotation

Considérons le champ tournant généré par la structure d'électrodes dans 3.13, qui est une approximation 2D du champ utilisé dans l'electrrotation [Zimmermann 1996]. En utilisant les systèmes de coordonnées illustrés dans C.1 avec la notation $(x_1, x_2, x_3) \equiv (x, y, z)$, et l'origine qui coïncide avec le centre du microsysteme, ce champ électrique peut s'écrire comme :

$$\begin{aligned}\bar{E}(x, y, t) = & E_0(\cos \omega t \hat{x} + \sin \omega t \hat{y}) \\ & E_0[\cos \omega t \hat{x} + \cos(\omega t - \pi/2) \hat{y}],\end{aligned}\quad (\text{C.15})$$

Selon (C.13) et (C.15) les gradients du potentiel sont :

$$\frac{\partial U_{re}}{\partial x} = -E_0, \quad \frac{\partial U_{im}}{\partial y} = E_0, \quad \frac{\partial U_{re}}{\partial y} = \frac{\partial U_{re}}{\partial z} = \frac{\partial U_{re}}{\partial x} = \frac{\partial U_{im}}{\partial z} = 0. \quad (\text{C.16})$$

L'amplitude et les composantes de phase selon (C.16) et (C.15) sont :

$$E_x = E_y = E_0, \quad \varphi_x = \pi, \quad \varphi_y = -\pi/2. \quad (\text{C.17})$$

L'expression du couple donnée par (C.7) s'écrit donc :

$$\begin{aligned}\langle \bar{T} \rangle = & -2\pi\epsilon_m abc \left\{ (Im[\underline{K}_2(\omega)] + Im[\underline{K}_3(\omega)]) \sin \theta \hat{x}' \right. \\ & + (Re[\underline{K}_3(\omega)] - Re[\underline{K}_1(\omega)]) \frac{\sin 2\theta}{2} \hat{y}' \\ & \left. + (Im[\underline{K}_1(\omega)] + Im[\underline{K}_2(\omega)]) \cos \theta \hat{z}' \right\} \quad (\text{C.18})\end{aligned}$$

Le couple d'orientation associée à la composante suivant $\hat{y}'$ du couple (C.20) est donnée par :

$$\langle \bar{T} \rangle_2 = \pi\epsilon_m abc E_0^2 (Re[\underline{K}_1^*(\omega)] - Re[\underline{K}_3^*(\omega)]) \sin 2\theta \quad (\text{C.19})$$

En particulier on a $\langle \bar{T} \rangle_2 = 0$ quand $\theta = 0, \pi/2, \pi$, et $3\pi/2$. En utilisant (??), on a $Re[\underline{K}_1^*] > Re[\underline{K}_3^*]$ et ainsi $\langle \bar{T} \rangle_2 > 0$ pour les valeurs de θ , $0 \leq \theta \leq -\pi/2$ et $\pi \leq \theta = 3\pi/2$, de même $\langle \bar{T} \rangle_2 < 0$ pour les valeurs de θ , $\pi/2 \leq \theta \leq -\pi$. Il en résulte que $\theta = 0$ et $\theta = \pi$ sont des orientations stables, ce qui implique que le sphéroïde oblate situé au centre du microsysteme tendra à orienter son semi-axe inférieur d'axisymétrie vers la direction orthogonale au champ appliqué. Dans les cas $\theta = 0$ et $\theta = \pi$ on retrouve avec (C.20) le couple :

$$\langle \bar{T} \rangle = -4\pi\epsilon_m abc E_0^2 Im[\underline{K}_1^*(\omega)] \hat{z}. \quad (\text{C.20})$$

Electrophorèse et électro-osmose

Description du phénomène d'électrophorèse

Le champ électrique exerce une force de Coulomb sur les particules et une force de signe opposée sur la double couche électrique qui entoure les particules. Cette dernière est appliquée au sein de la double couche électrique. Une partie de cette force est alors transférée à la particule via les contraintes visqueuses du fluide. Une particule chargée est donc soumise à un contre-courant électro-osmotique. Smoluchowski dérive en 1903, à partir des travaux d'Helmholtz, l'équation de mobilité électro-osmotique et électrophorétique :

$$\mu = \frac{\varepsilon_r \varepsilon_0}{\eta} \zeta \quad (\text{D.1})$$

où μ est la mobilité électrophorétique d'une particule, ε_0 la permittivité du vide, ε_r la permittivité relative du milieu (constante diélectrique), ζ le potentiel zêta de la surface de contact fluide-particule et η la viscosité dynamique du fluide. Cette équation n'est valide que lorsque la largeur de la double couche électrique (longueur de Debye) est beaucoup plus petite que le rayon de la particule considérée, ce qui était ignoré par Helmholtz et Smoluchowsky.

Ce modèle, bien que partiellement biaisé, est valide pour la plupart des solutions colloïdales car la longueur de Debye y est généralement de l'ordre de quelques nanomètres. En revanche, il n'explique pas le mouvement ionique et celui de particules sub-nanométriques.

Dans le cas de petites particules, Hückel et Debye ont proposé l'expression de mobilité suivante :

$$\mu = \frac{2\varepsilon_r \varepsilon_0}{3\eta} \zeta. \quad (\text{D.2})$$

Le nom de Debye, qui comptait déjà des équations à son nom, a été remplacé par celui d'Onsager afin de saluer la contribution de ce dernier aux recherches sur l'électrocinétique. Henry a montré, quelques années plus tard, que les équations de d'Helmholtz-Smoluchowsky et d'Hückel-Onsager traitent le même phénomène physique en considérant deux cas limites différents (voir annexe E). Dans le cas général, la mobilité électrophorétique dépend du rayon de la particule, de la longueur de Debye, de la conductivité du fluide ainsi que des conductivités surfacique et volumique de la particule. Cette formulation complexe de la mobilité électrophorétique est peu utilisée car les cas limites évoquées précédemment suffisent à décrire les principales expériences d'électrophorèse. On peut aussi remarquer, dans ces deux cas limites,

que la mobilité électrophorétique ne dépend pas de la taille des particules mais seulement de leur charge via leur potentiel zêta.

Description du phénomène d'électro-osmose

L'électro-osmose est un phénomène qui décrit la mise en mouvement d'un fluide sous l'influence d'un champ électrique tangentiel à la couche diffuse. Ce champ électrique met en mouvement la double couche électrique qui entraîne le fluide via les contraintes visqueuses. Lorsque l'écoulement est laminaire, un mouvement global du fluide peut être observé. L'électro-osmose a lieu en général sur les surfaces de matériaux poreux ou sur la surface de microcanaux. Le profil de vitesse d'un flux électro-osmotique diffère de celui créé par un flux laminaire créé par une pompe. Ces deux types de flux obéissent aux équations de Navier Stokes appliquées aux faibles nombres de Reynolds. La principale différence réside dans la condition limite appliquée à la surface. En effet, en première approximation, dans le cadre d'un écoulement électro-osmotique, il faut appliquer une condition de glissement entre le fluide et la surface de la particule. Cette vitesse de glissement est donnée par l'équation de Helmholtz Smoluchowski (voir 4.4.1.1) :

$$u_{eo} = -\frac{\varepsilon_e \varepsilon_0 \zeta}{\eta} E_s \quad (D.3)$$

où E_s est le champ électrique tangentiel à la surface du canal ou des pores. La vitesse électro-osmotique dépend entièrement de l'électrolyte utilisé. Dans le cadre d'un écoulement créé par un gradient de pression, la vitesse de glissement est nulle. Par ailleurs, la même construction mathématique que celle utilisée pour obtenir la mobilité électrophorétique d'une particule en suspension peut être utilisée pour déterminer l'écoulement électroosmotique d'un électrolyte à travers les espaces intermédiaires d'un milieu poreux constitué de particules stationnaires chargées. En effet, l'électrophorèse et l'électro-osmose sont simplement deux manifestations différentes de la vitesse relative entre la particule et la solution électrolytique.

Modèle général pour la mobilité électrophorétique

L'expression générale de la mobilité électrophorétique pour une sphère a été établie par Ohshima [Ohshima 1993] :

$$\mu = \frac{a}{9} \int_a^\infty \left(1 - \frac{3r^2}{a^2} + \frac{2r^3}{a^3} \right) G(r) dr \quad (\text{E.1})$$

avec

$$\tilde{\Phi}_0 = \frac{e\Phi_0}{k_B T} \quad (\text{E.2})$$

et

$$G(r) = -\frac{e}{\eta r} \frac{d\tilde{\Phi}_0}{dr} \sum_{i=1}^N z_i^2 C_i^\infty \exp(-z_i \tilde{\Phi}_0 \psi_i) \quad (\text{E.3})$$

où Φ^0 est le potentiel d'équilibre, $\tilde{\Phi}_0$ est la quantité adimensionnelle correspondante, et ψ_i est liée à la dérivation $\hat{\mu}$ du potentiel électrochimique des espèces :

$$\hat{\mu} = -z_i e \psi_i(r) E \cos \theta \quad (\text{E.4})$$

et

$$\psi_i(r) = r + \frac{a^3}{2r^3} + f_i(r) \quad (\text{E.5})$$

où le premier terme r du second membre correspond au potentiel du champ électrique appliqué $\mathbf{E} \cdot \mathbf{r}$, le second terme $a^3/2r^3$ correspond à la perturbation (dévi-
ation) du champ électrique en présence de la particule, et le terme $f_i(r)$ représente la contribution de l'effet de relaxation de l'électrolyte ionique.

Cas limites

La quantité κa n'est autre que l'épaisseur de la double couche électrique. Elle est communément appelée rayon électrocinétique. On peut distinguer deux cas limite par rapport cette l'épaisseur et ψ_i devient :

- Le premier cas représente la condition de rayon électrocinétique très grand, qui correspond à une longueur de Debye très petite comparée au rayon a de la particule.

$$\psi_i(r) = \frac{3a}{2} \quad (\text{E.6})$$

On obtient alors pour ce cas que :

$$\mu = \frac{\varepsilon_r \varepsilon_0}{\eta} \zeta \quad (\text{E.7})$$

C'est l'équation de Smoluchowski [Hunter 2013].

- Dans le cas limite inverse (double couche d'épaisseur tendant vers 0), ψ_i devient :

$$\psi_i(r) = r, \quad (\text{E.8})$$

qui conduit à :

$$\mu = \frac{2\varepsilon_r \varepsilon_0}{3\eta} \zeta, \quad (\text{E.9})$$

qui n'est autre que l'équation de Hückel.

Pour une particule sphérique avec un faible ζ et une valeur de κa arbitraire, ψ_i devient :

$$\psi_i(r) = r + \frac{a^3}{2r^2} \quad (\text{E.10})$$

qui donne l'équation de Henry

$$\mu = \frac{\varepsilon_r \varepsilon_0}{\eta} \zeta f(\kappa a) \quad (\text{E.11})$$

où $f(\kappa a)$ est la fonction de Henry [Ohshima 1993].

Valeurs caractéristique d'un spectre diélectrophorétique

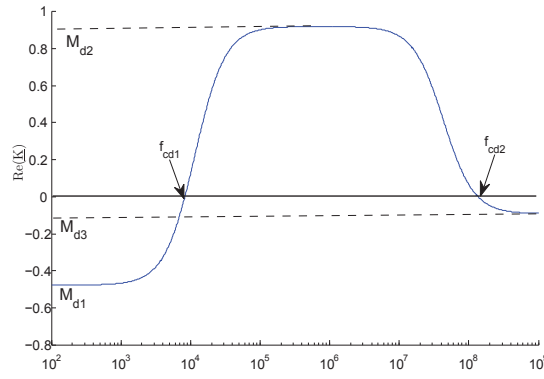


FIGURE F.1 – Spectre DEP des cellules calculé théoriquement selon le modèle à “cellule unique” avec indication des valeurs caractéristiques.

Il y a cinq valeurs caractéristiques sur ce spectre :

— Valeur du minimum :

$$M_{d1} = \frac{aG_m(\sigma_i - \sigma_e) - \sigma_i\sigma_e}{aG_m(\sigma_i + 2\sigma_e) + 2\sigma_i\sigma_e}; \quad (\text{F.1})$$

— valeur du maximum :

$$M_{d2} = \frac{\sigma_i - \sigma_e}{\sigma_i + 2\sigma_e}; \quad (\text{F.2})$$

— valeur limite pour les fréquences supérieures :

$$M_{d3} = \frac{\varepsilon_i - \varepsilon_e}{\varepsilon_i + 2\varepsilon_e}; \quad (\text{F.3})$$

Les points de dispersion (fréquences caractéristiques) correspondent à :

$$f_{cd1} = \frac{1}{2\pi aC} \left(\frac{2\sigma_i\sigma_e - aG_m(\sigma_i - 4\sigma_e)}{(\sigma_i + 2\sigma_e)(1/\sigma_e - 1/\sigma_i)} - G_m a^2 \right)^{\frac{1}{2}}; \quad (\text{F.4})$$

$$f_{cd2} = \frac{(\sigma_i + 2\sigma_e)}{[2\pi\varepsilon_0(\varepsilon_i + 2\varepsilon_e)]}. \quad (\text{F.5})$$

Calcul de la vitesse électro-osmotique due à la présence d'une double couche électrique.

Nous sommes dans le cadre de l'hypothèse de double couche mince avec un modèle simplifié de cellule à deux compartiments.

La composante normale E_x du champ induit une distribution de charge $\rho(x)$, alors que sa composante tangentielle E_y engendre un mouvement du liquide parallèle à la surface. L'expression de la vitesse est donnée par l'équation de Navier Stokes pour un écoulement stationnaire et un faible nombre de Reynolds :

$$\eta \Delta \mathbf{u} - \nabla \mathbf{p} = \mathbf{f}_e, \quad (\text{G.1})$$

où $\mathbf{f}_e = -\rho(x)\mathbf{E}$ est la force appliquée sur le liquide, et u est la vitesse du liquide. A cause de la symétrie du système, seule la composante tangentielle doit être calculée. En tenant compte du fait qu'il ne peut y avoir de gradient de pression tangentielle, et que la vitesse ne change suivant y ou z , l'équation (G.3) devient :

$$\frac{\partial^2 u_y}{\partial x^2} = -\frac{1}{\eta} \rho E_y \quad (\text{G.2})$$

En intégrant cette équation avec les conditions de bord de vitesse nulle sur la surface et de vitesse constante loin de la surface, on obtient :

$$u_y(x) = \frac{E_y}{\eta} \left(\int_a^x s \rho(s) ds + x \int_x^\infty \rho(s) dv - a \int_a^\infty \rho(s) ds \right). \quad (\text{G.3})$$

La vitesse du liquide loin de la surface ($x \rightarrow \infty$) est appelée vitesse électroosmotique, et est donnée par :

$$u_{eo} = u_y(x \rightarrow \infty) = \frac{E_y}{\eta} \gamma \quad (\text{G.4})$$

où γ s'écrit en fonction de la densité volumique de charge comme :

$$\gamma = \int_a^\infty s \rho(s) ds - a \int_a^\infty \rho(s) ds, \quad (\text{G.5})$$

C'est une quantité caractérisant la polarisation de la surface de la particule. Elle peut être considérée comme l'amplitude complexe de la variation induite du potentiel induite par le champ électrique.

La composante tangentielle de la vitesse du glissement électro-osmotique donnée par (G.6), peut être écrite en terme du potentiel zéta, par l'équation de Smoluchowski :

$$u_{eo} = -\frac{\varepsilon_e \varepsilon_0 \zeta}{\eta} E_s \quad (\text{G.6})$$

où E_s est la composante tangentielle du champ électrique (correspondant à E_y dans (G.5)), et ζ représente le potentiel zéta, qui inclut la composante d'équilibre ζ_0 (indépendante du champs) et la composante induite par le champs électrique $\hat{\zeta}$:

$$\zeta = \zeta_0 + \hat{\zeta} \quad (\text{G.7})$$

La composante tangentielle de la vitesse du glissement électro-osmotique ((G.4)) peut être vue comme l'action de la composante tangentielle du champ électrique sur la composante induite par le champ électrique du potentiel zéta. Avec l'application du champ électrique alternatif (tournant), les deux paires des composantes (orthogonales l'une par rapport à l'autre) des axes tournants contribuent au mouvement tangentiel de la surface extérieure de la double couche électrique par rapport à la surface de la particule, ce qui conduit à la vitesse de glissement électro-osmotique (dans un plan contenant le centre de la particule et le vecteur de champ électrique tournant) :

$$\omega_s = -\frac{E_0}{2\eta} \left(\text{Re} \left(1 - \frac{\xi_e}{a^3} \right) \text{Im}(\gamma) + \text{Im} \left(\frac{\xi_e}{a^3} \right) \text{Re}(\gamma) \right) \quad (\text{G.8})$$

La vitesse angulaire de la particule par rapport au fluide à la surface externe de la double couche électrique mince est alors donnée par :

$$\Omega_s = -\frac{\omega_s}{a} = -\frac{E_0}{2\eta a} \left(\text{Re} \left(1 - \frac{\xi_1}{a^3} \right) \text{Im}(\gamma) + \text{Im} \left(\frac{\xi_1}{a^3} \right) \text{Re}(\gamma) \right) \quad (\text{G.9})$$

Bibliographie

- [Amin 2008] Mohammad Amin, Pradip Peter Dey et Hassan Badkoobehi. *A complete electrical equivalent circuit model for biological cell*. In Proceedings of the 7th WSEAS International Conference on Applied Computer and Applied Computational Science, ACACOS'08, pages 343–348, Stevens Point, Wisconsin, USA, 2008. World Scientific and Engineering Academy and Society (WSEAS). (Cité en page 19.)
- [Arnold 1982] W. M. Arnold et U. Zimmermann. *Rotating-field-induced rotation and measurement of the membrane capacitance of single mesophyll cells of Avena sativa*. Z. Naturforsch., vol. 37c, pages 908–915, 1982. (Cité en pages 18 et 22.)
- [Arnold 1988] W.M Arnold et U. Zimmermann. *Electro-rotation : development of a technique for dielectric measurements on individual cells and particles*. Journal of Electrostatics, vol. 21, pages 151–191, 1988. (Cité en page 17.)
- [Arnold 1998] W.M. Arnold. *Dielectric measurements using novel three-electrode technique*. In Conference on Electrical Insulation and Dielectric Phenomena (CEIDP), Annual Report, volume 1, pages 356–359, 1998. (Cité en pages 16 et 17.)
- [Asami 1980] Koji Asami, Tetsuya Hanai et Naokazu Koizumi. *Dielectric Approach to Suspensions of Ellipsoidal Particles Covered with a Shell in Particular Reference to Biological Cells*. Japanese Journal of Applied Physics, vol. 19, no. 2, pages 359–365, 1980. (Cité en pages 127 et 128.)
- [Asami 1984] Koji Asami, Akihiko Irimajiri, Noriyuki Tetsuya Hanai Shiraishi et Kozo Utsumi. *Dielectric analysis of mitochondria isolated from rat liver I. Swollen mitoplasts as simulated by a single-shell model*. Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Biomembranes, vol. 778, no. 3, pages 559 – 569, 1984. (Cité en page 20.)
- [Asami 1996] K. Asami, T. Yonezawa, H. Wakamatsu et N. Koyanagi. *Dielectric spectroscopy of biological cells*. Bioelectrochemistry and Bioenergetics, vol. 40, no. 2, pages 141 – 145, 1996. (Cité en page 22.)
- [Asami 2002] Koji Asami. *Characterization of heterogeneous systems by dielectric spectroscopy*. Progress in Polymer Science, vol. 27, no. 8, pages 1617–1659, 2002. (Cité en page 18.)
- [Asami 2006] Koji Asami. *Dielectric dispersion in biological cells of complex geometry simulated by the three-dimensional finite difference method*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 39, no. 3, page 492, 2006. (Cité en page 59.)
- [Bird 1987] R.B. Bird et O. Hassager. Dynamics of polymeric liquids : Fluid mechanics. Dynamics of Polymeric Liquids. Wiley, 1987. (Cité en page 69.)
- [Cole 1928] Kenneth S. Cole. *Electric impedance of suspensions of spheres*. J. Gen. Physiol., vol. 12, no. 1, page 29, 1928. (Cité en page 19.)

- [Cole 1942] K.S. Cole et R.M. Guttman. *Electric impedance of the egg*. Journal of general physiology, vol. 25, 1942. (Cité en page 20.)
- [Com] *COMSOL Multiphysics*. (Cité en page 86.)
- [Committee 1950] Coulomb's Law Committee. *The Teaching of Electricity and Magnetism at the College Level. I. Logical Standards and Critical Issues*. American Journal of Physics, vol. 18, no. 1, pages 1–25, 1950. (Cité en page 64.)
- [Davey 1995] L.Christopher Davey et B.Douglas Kell. *The low-frequency dielectric properties of biological cells*. In Dieter Walz, Hermann Berg et Giulio Milazzo, editeurs, Bioelectrochemistry of Cells and Tissues, volume 2 of *Bioelectrochemistry : Principles and Practice*, pages 159–207. Birkhauser Basel, 1995. (Cité en page 18.)
- [De Gasperis 1998] Giovanni De Gasperis, XiaoBo Wang, Jun Yang, F Becker Frederick et Peter R.C. Gascoyne. *Automated electrorotation : dielectric characterization of living cells by real-time motion estimation*. Measurement Science and Technology, vol. 9, no. 3, page 518, 1998. (Cité en page 20.)
- [Delgado 2007] A.V. Delgado, F. Gonzalez-Caballerolez-Caballero, R.J. Hunter, L.K. Koopal et J. Lyklema. *Measurement and interpretation of electrokinetic phenomena*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 309, no. 2, pages 194 – 224, 2007. Elkin 06, International Electrokinetics Conference, June 25-29, Nancy, France. (Cité en page 95.)
- [Di Biasio 2007] A. Di Biasio et C. Cametti. *Effect of shape on the dielectric properties of biological cell suspensions*. Bioelectrochemistry, vol. 71, no. 2, pages 149–56, 2007. (Cité en page 9.)
- [Ellappan 2005] Premkumar Ellappan et Raji Sundararajan. *A simulation study of the electrical model of a biological cell*. Journal of Electrostatics, vol. 63, no. 3-4, pages 297 – 307, 2005. (Cité en page 19.)
- [Ermolina 2004] Irina Ermolina et Hywel Morgan. *The electrokinetic properties of latex particles :comparison of electrophoresis and dielectrophoresis*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 285, pages 419 –428, December 2004. (Cité en page 9.)
- [Ervenka 2009] Petr Ervenka, Michal Přibyl et Dalimil Šnita. *Numerical study on AC electroosmosis in microfluidic channels*. Microelectron. Eng., vol. 86, no. 4-6, pages 1333–1336, Avril 2009. (Cité en page 27.)
- [Ferrers 1877] N.M. Ferrers. An elementary treatise on spherical harmonics and subjects connected with them. Macmillan and co., 1877. (Cité en page 48.)
- [Franklin 2005] J. Franklin. Classical electromagnetism. Pearson Addison-Wesley, 2005. (Cité en page 44.)
- [Fricke 1953] Hugo Fricke. *The Maxwell-Wagner Dispersion in a Suspension of Ellipsoids*. The Journal of Physical Chemistry, vol. 57, no. 9, pages 934–937, 1953. (Cité en page 10.)

- [Fuhr 1986] G. Fuhr et P. I. Kuzmin. *Behavior of cells in rotating electric fields with account to surface charges and cell structures*. Biophysical journal, vol. 50, no. 5, pages 789–95, Novembre 1986. (Cité en page 78.)
- [Gagnon 2011] Zachary R. Gagnon. *Cellular dielectrophoresis : Applications to the characterization, manipulation, separation and patterning of cells*. ELECTROPHORESIS, vol. 32, no. 18, pages 2466–2487, 2011. (Cité en page 20.)
- [Gao 2003] Lei Gao, J. Huang et K. Yu. *Theory of ac electrokinetic behavior of spheroidal cell suspensions with an intrinsic dispersion*. Physical Review E, vol. 67, no. 2, pages 1–10, Février 2003. (Cité en pages 10 et 63.)
- [Gascoyne 2002] Peter R. C. Gascoyne et Jody Vykoukal. *Particle separation by dielectrophoresis*. Electrophoresis, vol. 23, pages 1973–1983, 2002. (Cité en page 12.)
- [Gimsa 1998] J. Gimsa et D. Wachner. *A unified resistor-capacitor model for impedance, dielectrophoresis, electrorotation, and induced transmembrane potential*. Biophys J, vol. 75, no. 2, pages 1107–16, 1998. (Cité en page 11.)
- [Gimsa 2001] Jan Gimsa. *A comprehensive approach to electro-orientation, electro-deformation, dielectrophoresis, and electrorotation of ellipsoidal particles and biological cells*. Bioelectrochemistry, vol. 54, no. 1, pages 23 – 31, 2001. (Cité en page 22.)
- [Green 1997] N G Green et H Morgan. *Dielectrophoretic investigations of sub-micrometre latex spheres*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 30, no. 18, page 2626, 1997. (Cité en pages 12 et 21.)
- [Green 2002] N.G. Green, A. Ramos et H. Morgan. *Numerical solution of the dielectrophoretic and travelling wave forces for interdigitated electrode arrays using the finite element method*. Journal of Electrostatics, vol. 56, no. 2, pages 235 – 254, 2002. (Cité en page 76.)
- [Grosse 1998] Constantino Grosse et Vladimir Nikolaievich Shilov. *Theory of the low frequency electrorotation of disperse particles in electrolyte solution*. Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects, vol. 140, no. 1, pages 199–207, 1998. (Cité en pages 95, 104 et 105.)
- [Gumerov 2005] Nail A Gumerov et Ramani Duraiswami. *Fast multipole methods for the helmholtz equation in three dimensions*. Elsevier, 2005. (Cité en page 44.)
- [Hagedorn 1992] Rolf Hagedorn, Günter Fuhr, Torsten Muller et Jan Gimsa. *Traveling-wave dielectrophoresis of microparticles*. ELECTROPHORESIS, vol. 13, no. 1, pages 49–54, 1992. (Cité en page 76.)
- [Halzel 1999] Ralph Halzel. *Non-invasive determination of bacterial single cell properties by electrorotation*. Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - Molecular Cell Research, vol. 1450, no. 1, pages 53 – 60, 1999. (Cité en page 20.)
- [Han 2013] Song-I Han, Young-Don Joo et Ki-Ho Han. *An electrorotation technique for measuring the dielectric properties of cells with simultaneous use of ne-*

- gative quadrupolar dielectrophoresis and electrorotation*. *Analyst*, vol. 138, pages 1529–1537, 2013. (Cit  en page 20.)
- [Hanai 1975] T. Hanai, N. Koizumi et A. Irimajiri. *A method for determining the dielectric constant and the conductivity of membrane-bounded particles of biological relevance*. *Biophysics of structure and mechanism*, vol. 1, pages 285–294, 1975. (Cit  en pages 20 et 21.)
- [Hanai 1979] T. Hanai, K. Asami et N. Koizumi. *Dielectric theory of concentrated suspension of shell-spheres in particular reference to the analysis of biological cell suspensions*. *Bull. Inst. Chem. Res. Kyoto University*, vol. 57, page 297, 1979. (Cit  en page 59.)
- [Hartley 1999] L. Hartley, K.V.I.S. Kalera et Paulb R. *Quadrupole levitation of microscopic dielectric particles*. *Journal of Electrostatics*, vol. 46, no. 4, pages 233–246, Mai 1999. (Cit  en page 50.)
- [Holzapfel 1982] C. Holzapfel, J. Vienken et U. Zimmermann. *Rotation of cells in an alternating electric field theory and experimental proof*. *The Journal of Membrane Biology*, vol. 67, pages 13–26, 1982. (Cit  en pages 16 et 99.)
- [Holzel 1993] R. Holzel. *Electric field calculation for electrorotation electrodes*. *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 26, no. 12, page 2112, 1993. (Cit  en pages 84 et 85.)
- [Holzel 1997] R. Holzel. *Electrorotation of single yeast cells at frequencies between 100 Hz and 1.6 GHz*. *Biophysical Journal*, vol. 73, no. 2, pages 1103 – 1109, 1997. (Cit  en page 18.)
- [Huang 1992] Y Huang, R Holzel, R Pethig et Xiao-B Wang. *Differences in the AC electrodynamics of viable and non-viable yeast cells determined through combined dielectrophoresis and electrorotation studies*. *Physics in Medicine and Biology*, vol. 37, no. 7, page 1499, 1992. (Cit  en pages 18 et 58.)
- [Hughes 1994] M.P. Hughes et P.R.C. Gascoyne & R. Pethig X B. Wang F F. Becker. *Computer-aided analyses of electric fields used in electrorotation studies*. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, vol. 27, no. 7, page 1564, 1994. (Cit  en pages 63, 84 et 85.)
- [Hughes 1998] Michael Pycraft Hughes. *Computer-aided analysis of conditions for optimizing practical electrorotation*. *Physics in Medicine and Biology*, vol. 43, no. 12, page 3639, 1998. (Cit  en pages 17 et 85.)
- [Hughes 1999] Michael P Hughes, Steffen Archer et Hywel Morgan. *Mapping the electrorotational torque in planar microelectrodes*. *Journal of Physics D : Applied Physics*, vol. 32, no. 13, page 1548, 1999. (Cit  en pages 21 et 85.)
- [Hughes 2003] M.P. Hughes. *Nanoelectromechanics in engineering and biology*. *Nano- and microscience, engineering, technology, and medicine series*. CRC Press, 2003. (Cit  en pages 20, 59 et 103.)
- [Hunter 2013] Robert J Hunter. *Zeta potential in colloid science : principles and applications*, volume 2. Academic press, 2013. (Cit  en page 136.)

- [Irimajiri 1979] Akihiko Irimajiri, Tetsuya Hanai et Akira Inouye. *A dielectric theory of "multi-stratified shell" model with its application to a lymphoma cell*. Journal of Theoretical Biology, vol. 78, no. 2, pages 251 – 269, 1979. (Cité en page 59.)
- [Jackson 1998] John D. Jackson. Classical Electrodynamics Third Edition. Wiley, third édition, Août 1998. (Cité en pages 41 et 44.)
- [Jones 1985] Thomas B. Jones. *Multipole Corrections to Dielectrophoretic Force*. IEEE Transactions on Industry Applications, vol. IA-21, no. 4, pages 930–934, Juillet 1985. (Cité en pages 67 et 71.)
- [Jones 1986] T.B Jones. *Dielectrophoretic force in axisymmetric fields*. J. Electrostatics, vol. 18, pages 55–62, 1986. (Cité en pages 58, 64 et 65.)
- [Jones 1990] T B. Jones. *Dielectrophoretic spectra of single cells determined by feedback-controlled levitation*. Biophysical journal, vol. 57, pages 173–82, 1990. (Cité en page 15.)
- [Jones 1994] T.B. Jones et Masao Washizu. *Equilibria and dynamics of DEP-levitated particles : multipolar theory*. Journal of Electrostatics, vol. 33, no. 2, pages 199 – 212, 1994. (Cité en pages 15 et 63.)
- [Jones 1995] T. B. Jones. Electromechanics of particles. Cambridge Univ Press, 1995. (Cité en pages 9, 14, 15, 16, 18, 20, 21, 36, 45, 46, 50, 56, 58, 63, 64 et 81.)
- [Jones 2003] Thomas B Jones. *Basic theory of dielectrophoresis and electrorotation*. IEEE engineering in medicine and biology magazine : the quarterly magazine of the Engineering in Medicine & Biology Society, vol. 22, no. 6, pages 33–42, 2003. (Cité en pages 9, 10, 12, 19, 22, 44, 50 et 65.)
- [Karan 2011] Karan et Kaler. *Comparison of the effective dipole method for the computation of the torque with the Maxwell's stress tensor method in non-lossy systems*. The journal of physical chemistry. B, vol. 115, no. 26, pages 8506–8517, Juillet 2011. (Cité en page 64.)
- [Kiesel 2006] M. Kiesel, R. Reuss, J. Endter, D. Zimmermann, H. Zimmermann, R. Shirakashi, E. Bamberg, U. Zimmermann et V.L. Sukhorukov. *Swelling-Activated Pathways in Human T-Lymphocytes Studied by Cell Volumetry and Electrorotation*. Biophysical Journal, vol. 90, no. 12, pages 4720 – 4729, 2006. (Cité en page 18.)
- [Kissa 1999] Erik Kissa. Dispersions : characterization, testing, and measurement, volume 84. CRC Press, 1999. (Cité en page 93.)
- [Korohoda 2008] W. Korohoda et A. Wilk. *Cell electrophoresis : a method for cell separation and research into cell surface properties*. Cellular & Molecular Biology Letters, vol. 13, pages 312–326, 2008. (Cité en page 23.)
- [Lastochkin 2004] D. Lastochkin, R. Zhou, P. Wang, Y. Ben et H.C Chang. *Electrokinetic micropump and micromixer design based on AC Faradaic polarization*. J. Appl. Phys, vol. 96, (3), pages 1730–1733, 2004. (Cité en page 27.)

- [Liu 2004] Hui Liu et Haim H Bau. *The dielectrophoresis of cylindrical and spherical particles submerged in shells and in semi-infinite media*. Physics of Fluids (1994-present), vol. 16, no. 5, pages 1217–1228, 2004. (Cité en page 64.)
- [Lyklema 1995] J. Lyklema. Fundamentals of interface and colloid science : Solid-liquid interfaces. vol2. Academic Press, 1995. (Cité en pages 24, 93, 95 et 105.)
- [Lyklema 2001] J Lyklema. *Surface conduction*. Journal of Physics : Condensed Matter, vol. 13, no. 21, page 5027, 2001. (Cité en page 96.)
- [Makino 2011] Kimiko Makino et Hiroyuki Ohshima. *Soft particle analysis of electrokinetics of biological cells and their model systems*. Science and Technology of Advanced Materials, vol. 12, no. 2, page 023001, 2011. (Cité en page 120.)
- [Masao 1993] Washizu Masao, T. B. Jones et K. V. I. S. Kaler. *Higher-order dielectrophoretic effects : levitation at a field null*. Biochimica et Biophysica Acta (BBA) - General Subjects, vol. 1158, no. 1, pages 40–46, 1993. (Cité en pages 64 et 72.)
- [Miller 1993] R D Miller et T B Jones. *Electro-orientation of ellipsoidal erythrocytes. Theory and experiment*. Biophysical journal, vol. 64, no. 5, pages 1588–95, Mai 1993. (Cité en page 130.)
- [Morgan 2003] H. Morgan et N.G. Green. *Ac electrokinetics : colloids and nanoparticles*. Numeéro 2 de Microtechnologies and microsystems series. Research Studies Press, Philadelphia, PA, USA, 2003. (Cité en pages 8, 13, 14 et 63.)
- [Morgan 2007] H. Morgan, T. Sun, D. Holmes, S. Gawad et N.G. Green. *Single cell dielectric spectroscopy*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 40, no. 1, page 61, 2007. (Cité en pages 19 et 20.)
- [Müller 1966] C. Müller. Spherical harmonics. Lecture notes in mathematics. Springer-Verlag, 1966. (Cité en page 48.)
- [Nicolini 1998] Claudio. Nicolini, A. Chiabrera, . Schwan Herman P. et North Atlantic Treaty Organization. Interactions between electromagnetic fields and cells, edited by chiabrera,a. and nicolini,c. schwan,and h.p., volume 43. Published in cooperation with NATO Scientific Affairs Division [by] Plenum Press, New YorkPlenum Press, New York, 1998. (Cité en pages 10, 63 et 79.)
- [Ogbi 2012] A. Ogbi, L. Nicolas, R. Perrussel, S. J. Salon et D. Voyer. *Numerical Identification of Effective Multipole Moments of Polarizable Particles*. IEEE Transactions on Magnetism, vol. 48, pages 675–678, Février 2012. (Cité en pages 50 et 70.)
- [Ohshima 1993] Hiroyuki Ohshima et Tamotsu Kondo. *Electrophoretic mobility of a soft particles with a nonuniformly charged surface layer as a model for cells*. Biophysical Chemistry, vol. 46, no. 2, pages 145 – 152, 1993. (Cité en pages 109, 135 et 136.)
- [Ohshima 2010] Hiroyuki Ohshima. Electrophoretic mobility of soft particles, pages 431–467. John Wiley & Sons, Inc., 2010. (Cité en pages 107 et 120.)

- [Pethig 1979] R. Pethig. Dielectric and electronic properties of biological materials. Wiley, 1979. (Cité en page 11.)
- [Pethig 1987] R. Pethig et D.B. Kell. *The passive electrical properties of biological systems : their significance in physiology, biophysics and biotechnology*. Physics in Medicine and Biology, vol. 32, no. 8, page 933, 1987. (Cité en page 18.)
- [Pethig 1992] R Pethig, Ying Huang, Xiao bo Wang et J P H Burt. *Positive and negative dielectrophoretic collection of colloidal particles using interdigitated castellated microelectrodes*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 25, no. 5, page 881, 1992. (Cité en page 20.)
- [Pohl 1971] H A Pohl et J S Crane. *Dielectrophoresis of cells*. Biophys J, vol. 11, no. 9, pages 711–27, 1971. (Cité en page 63.)
- [Pohl 1978] H. A. Pohl. *Dielectrophoresis : the Behavior of Neutral Matter in Nonuniform Electric Fields*. Cambridge University Press, 1978. (Cité en pages 8, 20, 36 et 65.)
- [Raab 2005] R.E. Raab et O.L. Delange. *Multipole theory in electromagnetism*. Oxford University Press, 2005. (Cité en page 43.)
- [Renard 2008] Yves Renard et Julien Pommier. *getfem++ finite element library*, 2008. <http://download.gna.org/getfem/html/homepage>. (Cité en page 53.)
- [Ronald 2010] Pethig Ronald. *Dielectrophoresis : Status of the theory, technology, and applications*. Biomicrofluidics, vol. 4, no. 2010, page 022811, 2010. (Cité en pages 8, 18, 22, 50 et 63.)
- [Sauer 1985] F.A. Sauer et R.W. Schlögel. *Torques exerted on cylinders and spheres by external electromagnetic fields*, pages 203–251. Eds. New York : Plenum, 1985, 1985. (Cité en pages 36 et 79.)
- [Schnelle 1999a] T. Schnelle, T. Muller et G. Fuhr. *Dielectric single particle spectroscopy for measurement of dispersion*. Medical & Biological Engineering & Computing, vol. 37, pages 264–271, 1999. (Cité en page 20.)
- [Schnelle 1999b] Thomas Schnelle, Torsten Müller, Stefan Fiedler et Günter Fuhr. *The influence of higher moments on particle behaviour in dielectrophoretic field cages*. Journal of Electrostatics, vol. 46, no. 1, pages 13–28, Mars 1999. (Cité en pages 56, 64, 72 et 99.)
- [Schwan 1983] H.P. Schwan. *Electrical properties of blood and its constituents : Alternating current spectroscopy*. Blut, vol. 46, pages 185–197, 1983. (Cité en page 10.)
- [Shilov 2001] VN Shilov, AV Delgado, F Gonzalez-Caballero et C Grosse. *Thin double layer theory of the wide-frequency range dielectric dispersion of suspensions of non-conducting spherical particles including surface conductivity of the stagnant layer*. Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects, vol. 192, no. 1, pages 253–265, 2001. (Cité en page 96.)

- [Sokirko 1992] AV. Sokirko. *The electrorotation of axisymmetrical cell*. Biol. Mem, vol. 6, no. 4, pages 587–600, 1992. (Cité en page 127.)
- [Stratton 1941] Julius Adams Stratton. *Electromagnetic theory*. McGraw-Hill, New York, 1st ed. édition, 1941. (Cité en pages 12, 36, 43, 44, 48, 63, 66, 79 et 127.)
- [Sukhorukov 2001] V.L. Sukhorukov, G. Meedt, M. Kurschner et U. Zimmermann. *A single-shell model for biological cells extended to account for the dielectric anisotropy of the plasma membrane*. Journal of Electrostatics, vol. 50, no. 3, pages 191–204, 2001. (Cité en page 22.)
- [Thoen 1989] J. Thoen, R. Kindt, W. van Dael, M. Merabet et T. K. Bose. *Low-frequency dielectric dispersion and electric conductivity near the consolute point in some binary liquid mixtures*. Physica A : Statistical and Theoretical Physics, vol. 156, no. 1, pages 92–113, Mars 1989. (Cité en page 24.)
- [Valero 2010] A. Valero, T. Braschler et P. Renaud. *A unified approach to dielectric single cell analysis : impedance and dielectrophoretic force spectroscopy*. Lab Chip, vol. 10, no. 17, pages 2216–25, 2010. (Cité en page 19.)
- [Voyer 2010] Damien Voyer, Marie Frénéa-Robin, François Buret et Laurent Nicolas. *Improvements in the extraction of cell electric properties from their electrorotation spectrum*. Bioelectrochemistry, vol. 79, no. 1, pages 25 – 30, 2010. (Cité en page 20.)
- [Wang 1992] Xiao-Bo Wang, R Pethig et T B Jones. *Relationship of dielectrophoretic and electrorotational behaviour exhibited by polarized particles*. Journal of Physics D : Applied Physics, vol. 25, no. 6, page 905, 1992. (Cité en page 18.)
- [Washizu 1994] M. Washizu et T. Jones. *Multipolar dielectrophoretic force calculation*. Journal of Electrostatics, vol. 33, no. 2, pages 187–198, 1994. (Cité en page 45.)
- [Washizu 2004] Masao Washizu. *Equivalent multipole-moment theory for dielectrophoresis and electrorotation in electromagnetic field*. Journal of Electrostatics, vol. 62, no. 1, pages 15 – 33, 2004. (Cité en pages 47 et 50.)
- [Wu 2005] Jie Wu, Yuxing Ben, David Battigelli et Hsueh-Chia Chang. *Long-Range AC Electroosmotic Trapping and Detection of Bioparticles*. Industrial & Engineering Chemistry Research, vol. 44, no. 8, pages 2815–2822, 2005. (Cité en page 27.)
- [Yang 1999] J. Yang, Y. Huang, X. Wang, X. B. Wang, F. Becker et P. R. C. Gascoyne. *Dielectric Properties of Human Leukocyte Subpopulations Determined by Electrorotation as a Cell Separation Criterion*. Biophys. J., vol. 76, no. 6, pages 3307–3314, 1999. (Cité en page 18.)
- [Zhang 1983] H.Z. Zhang, K. Sekine, T. Hanai et N. Koizumi. *Dielectric observations on polystyrene microcapsules and the theoretical analysis with reference to interfacial polarization*. Colloid and Polymer Science, vol. 261, pages 381–389, 1983. (Cité en page 21.)

- [Zhu 2009] Junjie Zhu et Xiangchun Xuan. *Particle electrophoresis and dielectrophoresis in curved microchannels*. Journal of Colloid and Interface Science, vol. 340, no. 2, pages 285 – 290, 2009. (Cité en page 9.)
- [Zimmerman 1999] Viviana Zimmerman, Constantino Grosse et Vladimir Nikolaievich Shilov. *Contribution of electro-osmosis to electrorotation spectra in the frequency range of the β dispersion*. Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects, vol. 159, no. 2, pages 299–309, 1999. (Cité en page 104.)
- [Zimmermann 1996] Ulrich Zimmermann et Garry A. Neil. Electromanipulation of Cells. CRC-Press, 1 édition, Avril 1996. (Cité en pages 12, 20, 97 et 132.)

— Les multipôles effectifs identifiées sont des multipôles linéaires (2.1.4.1).

Le premier point montre que la composante quadrupolaire ne prend des valeurs significatives que pour la composante axiale, et le deuxième point montre que le modèle multipolaire pertinent pour la polarisation dans le problème considéré est celui des multipôles linéaires. Cela justifie le recours fréquent à ce modèle multipolaire dans les phénomènes de lévitation où le champ électrique est dominé par sa composante axiale z [Jones 1995, Jones 1986].

2.3 Modèle multicouche

Jusqu'à présent, le modèle de particule considéré était celui d'une particule homogène. Cependant la plupart de particules biologiques ont des structures plus complexes, notamment avec la présence de la membrane enveloppant le cytoplasme pour les cellules biologiques. Les modèles couramment utilisés pour étudier le comportement électrique d'une cellule dans ces cas sont des modèles analytiques et semi-analytiques fournissant une approche plus ou moins adaptée à la compréhension du phénomène. Ci-dessous, nous décrivons une méthode pour traiter les cas de cellules sphériques et ellipsoïdales multicouches.

2.3.1 Modèle multicouche sphérique

Pour les particules de structure multicouche (fig. 2.17), les propriétés électriques des différentes régions composant cette structure contribuent à sa réponse électrique lors de l'application d'un champ extérieur. La méthode pour décrire ces particules hétérogènes présentée ici correspond au modèle de type "smeared-out" [Huang 1992]. Selon cette approche, ces particules sont décrites électriquement par une permittivité équivalente déterminée selon le processus suivant :

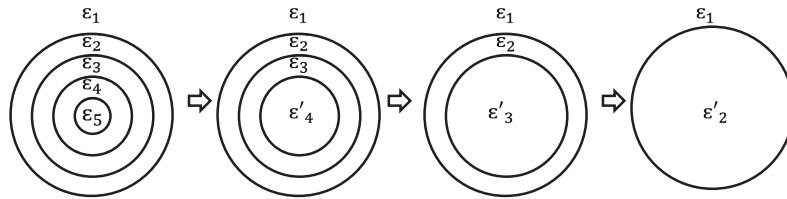


FIGURE 2.17 – Processus de détermination de la permittivité équivalente pour une sphère multicouche.

Supposons que la structure de la particule multicouche soit composée de N sphères concentriques de rayon R_i caractérisées par des permittivités ε_i où $i = 1, 2, \dots, N+1$, avec $N = 1$ correspondant au milieu externe (fig. 2.17). La permittivité effective de l'ensemble constitué des couches $N+1$ et N est d'abord déterminée

par la résolution de l'équation de Laplace dans les les trois régions de la structure élémentaire considérée à cette étape. En répétant ce processus (deux à deux) successivement (pour atteindre la couche $N = 2$) selon le schéma illustré (fig. 2.17), on obtient une sphère homogène équivalente de rayon R_{N+1} de permittivité équivalente en utilisant un modèle dipolaire ou multipolaire.

Permittivité équivalente par le modèle dipolaire (Champ uniforme)

Pour étudier le comportement électrique de particules multicouches dans le cas où la particule est exposée à un champ uniforme, nous avons montré précédemment que l'utilisation du modèle dipolaire est adaptée. La permittivité équivalente issue de ce modèle est donnée par :

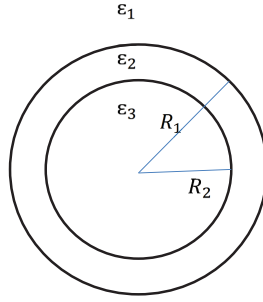


FIGURE 2.18 – Modèle double-couche sphérique

$$(\varepsilon_2)' = \varepsilon_2 \frac{a^3 + 2K_1}{a^3 - 2K_1} \quad (2.62)$$

où $a = R_1/R_2$. La valeur ε_2' est une permittivité homogène équivalente qui remplace ε_2 dans le facteur de Clausius-Mossoti (2.61). Pour les particules à plusieurs couches ($N \geq 2$) le schéma "smeared-out" décrit ci-dessus est appliqué. Le passage élémentaire à la $i^{\text{ème}}$ étape dans cette méthode est donné par :

$$\left(\frac{\varepsilon'_{i+1} - \varepsilon'_i}{\varepsilon'_{i+1} + 2\varepsilon'_i} \right) = \left(\frac{R_i}{R_{i-1}} \right)^3 \left(\frac{\varepsilon'_i - \varepsilon'_{i-1}}{\varepsilon'_i + 2\varepsilon'_{i-1}} \right), \quad 1 \leq i \leq N. \quad (2.63)$$

Il est à noter que c'est ce modèle de permittivité équivalente qui est la plupart du temps utilisé dans la littérature, même dans le cas où le champ est non-uniforme [Asami 2006, Hughes 2003, Hanai 1979, Irimajiri 1979]. Dans cette configuration de non-uniformité du champ, il est plus adapté de calculer la permittivité équivalente par le modèle multipolaire.

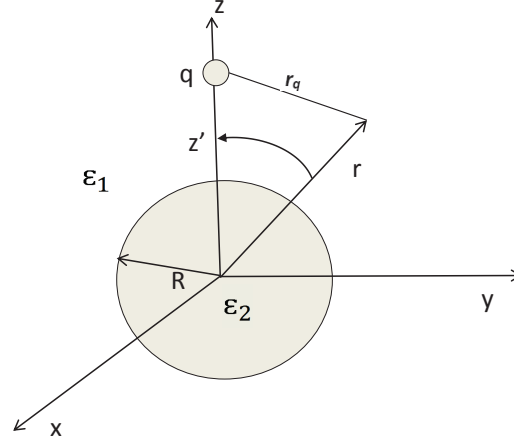


FIGURE 3.1 – Une sphère diélectrique immergée dans un fluide diélectrique est soumise à un champ électrique généré par une charge ponctuelle q .

pour un champ électrique quelconque en reliant les moments multipolaires linéaires induits aux dérivées spatiales successives du champ électrique.

La solution générale de l'équation de Laplace pour le potentiel électrique électrostatique s'écrit :

$$U^{in}(r, \theta) = \sum_{n=0}^{+\infty} C_n r^n P_n(\cos(\theta)), \quad r \leq R \quad (3.6)$$

$$U^{out}(r, \theta) = \frac{q}{4\pi\epsilon_1 r_q} + \sum_{n=0}^{+\infty} B_n r^{n+1} P_n(\cos(\theta)), \quad r \geq R \quad (3.7)$$

où les $P_n(\cos \theta)$ sont les polynômes de Legendre définies dans l'annexe C. Les constantes B_n et C_n sont déterminées en utilisant les conditions aux limites à l'interface entre le milieu de suspension et la particule, plus précisément :

$$U^{in}(r = R, \theta) = U^{out}(r = R, \theta), \quad (3.8)$$

$$\epsilon_2 E_n^{in}(r = R, \theta) = \epsilon_1 E_n^{out}(r = R, \theta). \quad (3.9)$$

En utilisant le développement [Stratton 1941] :

$$\frac{1}{r_q} = \frac{1}{z'} \sum_{n=0}^{+\infty} \left(\frac{r}{z'}\right)^n P_n(\cos(\theta)) \quad (3.10)$$

avec (3.8) et (3.9), on obtient la forme des coefficients B_n et C_n :

3.2.1.3 Cas de particule multicouches

Pour le cas de base à une couche (fig. 3.7) le modèle de permittivité équivalente donne [Fuhr 1986] :

$$\underline{\varepsilon}'_2 = \left\{ \frac{a^3 + 2 \left(\frac{\underline{\varepsilon}_3 - \underline{\varepsilon}_2}{\underline{\varepsilon}_3 + 2\underline{\varepsilon}_2} \right)}{a^3 - \left(\frac{\underline{\varepsilon}_3 - \underline{\varepsilon}_2}{\underline{\varepsilon}_3 + 2\underline{\varepsilon}_2} \right)} \right\} \quad (3.76)$$

avec $a = R_1/R_2$. La procédure d'"homogénéisation" décrite au chapitre 2 permet de remonter à une permittivité équivalente pour une structure concentrique à $N + 1$ couches selon :

$$\left(\frac{\underline{\varepsilon}'_{i+1} - \underline{\varepsilon}'_i}{\underline{\varepsilon}'_{i+1} + 2\underline{\varepsilon}'_i} \right) = \left(\frac{R_i}{R_{i-1}} \right)^3 \left(\frac{\underline{\varepsilon}'_i - \underline{\varepsilon}_{i-1}}{\underline{\varepsilon}'_i + 2\underline{\varepsilon}_{i-1}} \right), \quad 1 \leq i \leq N. \quad (3.77)$$

La permittivité équivalente, insérée dans le facteur de Clausius-Mossotti généralisé dans les équations (3.17), (3.66) et (3.69), permet de calculer la force DEP et le couple exercés sur une particule multicouche.

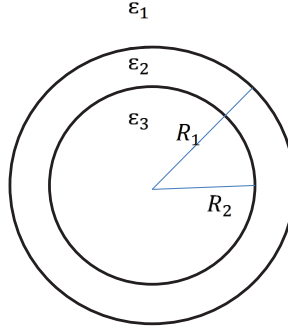


FIGURE 3.7 – Une particule diélectrique à une couche immergée dans un milieu diélectrique.

La méthode classique d'"homogénéisation"³ convient parfaitement lorsqu'on en s'intéresse à l'estimation de la force et du couple en utilisant le modèle des moments effectifs classiques, car elle est fondée sur l'approximation dipolaire. Cependant, cette approximation est inadaptée à l'estimation des termes d'ordre supérieur dans le modèle multipolaire, et se révèle donc inappropriée dans les situations où ces termes sont significatifs, en particulier lorsque la non-uniformité du champ est importante. Pour résoudre ce problème, l'approche proposée est celle des permittivités équivalentes multipolaires étudiées (2.63) dans le chapitre précédent, qui utilise des permittivités complexes (i.e avec les substitutions $\varepsilon_r \rightarrow \underline{\varepsilon}_r$). Avec cette approche la permittivité équivalente de la structure à 1 couche est donnée par :

3. dite méthode "smeared-out"

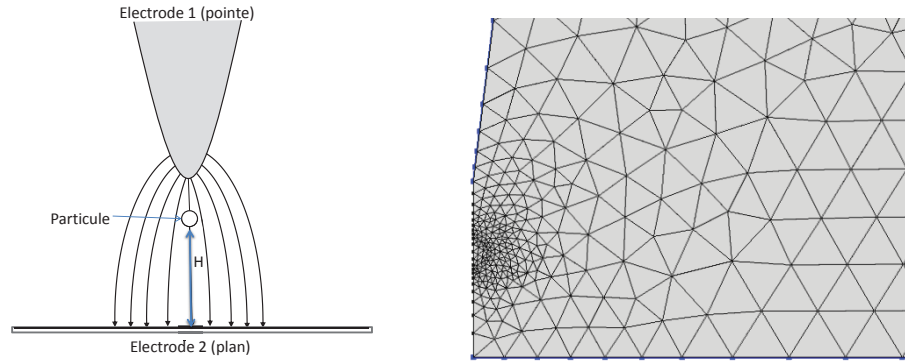


FIGURE 3.9 – Représentation schématique de la configuration pointe-plan (gauche), et image du maillage utilisé pour les calculs de champ (droite).

La particule est plongée dans une solution aqueuse de type alcool sucré. La distance entre les deux électrodes vaut $100\mu m$. Les calculs sont effectués pour plusieurs positions de la particule le long de l'axe de symétrie (avec une distance H de son centre à l'électrode plane), et la fréquence du champ électrique appliqué est comprise entre 10Hz et 100MHz. Les différentes propriétés électriques sont résumées dans le tableau 3.2.3.

Matériau	Permittivité électrique ε (F/m)	Conductivité électrique σ (S/m)
Solution aqueuse	$77.8\varepsilon_0$	10^{-3}
Particule	$2.55\varepsilon_0$	10^{-2}

TABLE 3.1 – Tableau des paramètres électriques de la particule (de rayon $R = 10^{-5}m$) et du milieu de suspension.

La figure 3.10 présente les résultats de calcul de la force par le tenseur de Maxwell pour différentes valeurs de H , et pour les fréquences 1KHz, 1MHz et 100MHz. L'analyse de ces résultats met en évidence les points suivants :

- D'une part la force exercée sur la particule par le champ non-uniforme $\overline{E}$ pour les trois fréquences varie peu dans la zone située entre l'électrode plan et le centre du système (i.e pour approximativement $H = 50.10^{-6}m$).
- D'autre part, aux basses fréquences, la force DEP appliquée sur la particule est négative, ce qui provoque un mouvement de la particule dans la direction $-z$ (voir DEP négative, chapitre 1). Aux fréquences plus élevées (1MHz et plus), la force DEP est positive, provoquant le mouvement de la particule vers la direction $+z$ (voir DEP positive, chapitre 1). Bien évidemment, ces tendances sont liées au contraste des constantes électriques entre la particule et le milieu de suspension.

champ produit, mis en évidence dans [Hughes 1994, Hughes 1998].

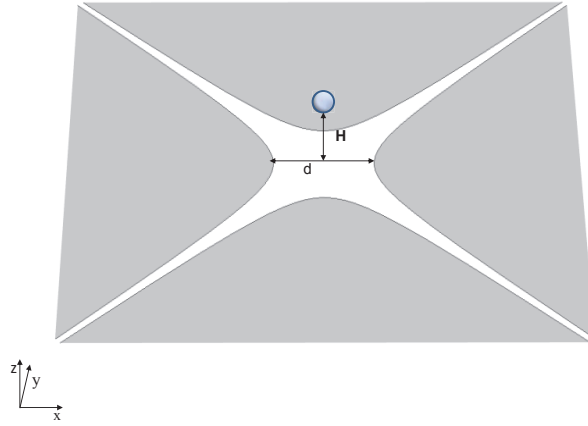


FIGURE 3.13 – Représentation schématique d'un système d'électrodes polynômiales, tel qu'il est utilisé pour l'électrorotation (ROT). La particule est mise en suspension au centre du microsystème sur l'axe z à une distance H du plan des électrodes. Les quatre électrodes en quadrature génèrent un champ tournant.

Les électrodes du microsystème (fig. 3.13) sont considérées comme étant d'épaisseur nulle. Une particule sphérique est placée au centre du microsystème. Notons que cette zone présente une situation de symétrie et que le champ y est homogène [Hughes 1999, Holzel 1993].

La géométrie des électrodes polynômiales dans le plan xy est défini par l'équation

$$||x^2 - y^2|| = d^2 \quad (3.93)$$

où $2d$ est la distance séparant les pointes de deux électrodes opposées. Pour générer un champ tournant, les quatre électrodes sont alimentées par quatre tensions sinusoïdales $V = V_0 \cos(\omega t + \varphi)$ avec $V_0 = 10V$, avec un déphasage de 90° entre deux électrodes adjacentes. Si le champ généré est homogène dans la partie centrale du microsystème, il ne l'est pas au voisinage des électrodes, ce qui nécessite de prendre en compte la répartition de la phase en dehors de la région centrale et nécessite l'utilisation d'une expression plus générale pour le champ électrique appliqué.

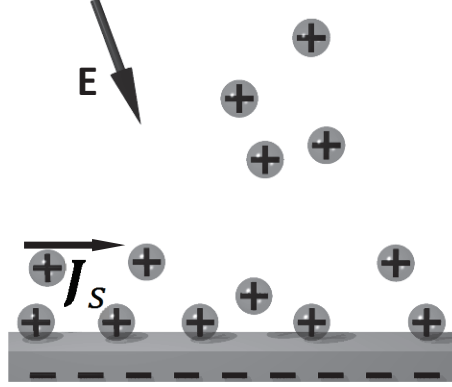


FIGURE 4.2 – Densité de courant surfacique au voisinage d’une surface plane chargée.

Le rapport de la conductivité surfacique S^σ à la conductivité volumique du fluide σ_m de suspension d’une particule est donnée par le nombre sans dimension χ , appelé nombre de Dukhin [Lyklema 1995, Delgado 2007] :

$$\chi = \frac{S^\sigma}{\sigma_m a} \quad (4.7)$$

Selon cette expression, une conductivité externe importante σ_m réduit l’influence potentielle d’une charge surfacique. La conductivité effective σ d’une particule est la somme des deux contributions volumique et surfacique¹ :

$$\sigma = S^\sigma / a + \sigma_p \quad (4.8)$$

La conduction surfacique n’est pas considérée dans la théorie classique de Helmholtz-Smoluchowski couramment utilisée dans les modèles de conduction pour les systèmes dispersifs [Grosse 1998]. Dans cette théorie, seule la conductivité intrinsèque de la particule σ_p est prise en compte pour le calcul du champ électrique tangentiel dans la double couche électrique. Par conséquent, en plus de la condition de rayon électrocinétique κa grand², qui signifie que la longueur de Debye κ^{-1} est petite par rapport au rayon de la particule :

$$\kappa a \gg 1, \quad (4.9)$$

l’applicabilité de la théorie de Helmholtz-Smoluchowski nécessite de très faible valeur de χ :

$$\chi \ll 1. \quad (4.10)$$

1. La conductivité surfacique est donnée à l’extérieur de la particule dans la double couche électrique

2. La quantité κa est appelée aussi rayon électrocinétique

$$K^* = \frac{\sigma_p^* - \sigma_e^*}{\sigma_p^* + 2\sigma_e^*} \quad (4.20)$$

Le couple d'électrorotation calculé avec le modèle dipolaire [Schnelle 1999b] est donné par :

$$\bar{T} = 4\pi\epsilon_0\epsilon_e\bar{E}_0^2 \sum_s^n \left[M_s \frac{f/f_{cs}}{1 + (f/f_{cs})^2} \right] \quad (4.21)$$

où n est le nombre des diélectriques composant la cellule. Ici les quantités M_s sont des combinaisons des constantes électriques des matériaux de la particule. f_{cs} représentent les fréquences caractéristiques du spectre.

La vitesse d'électrorotation issue de ce modèle s'écrit :

$$\Omega_D = -\frac{\epsilon_0\epsilon_e K''}{2\eta} \quad (4.22)$$

où η est la viscosité du milieu.

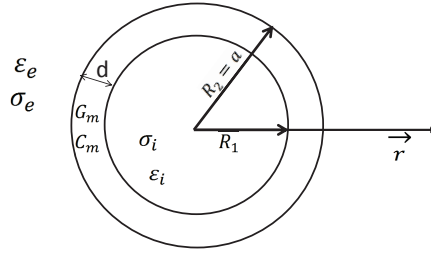


FIGURE 4.3 – Représentation de la cellule selon le modèle “Single-shell”, avec i =milieu interne (i.e cytoplasme), avec une conductivité (σ_i), et une permittivité (ϵ_i); m = système de membrane (G_m, ϵ_m); e = milieu extérieure (σ_e, ϵ_e)

Considérons un modèle de particule simple représentée par une sphère homogène conductrice et non-dispersive entourée par une couche très fine représentant la membrane (fig. 4.3). Pour cette configuration de particule, la membrane domine le comportement de rotation dans la gamme de fréquence des kHz, alors que la polarisation du cytoplasme, qui dépend du rapport entre la conductivité interne et externe σ_i et σ_e , détermine le spectre de rotation dans la gamme des MHz. La vitesse d'électrorotation dans ce cas est donnée par :

$$\Omega_D = 2M_1 \frac{f/f_{c1}}{1 + (f/f_{c1})^2} + 2M_2 \frac{f/f_{c2}}{1 + (f/f_{c2})^2} \quad (4.23)$$

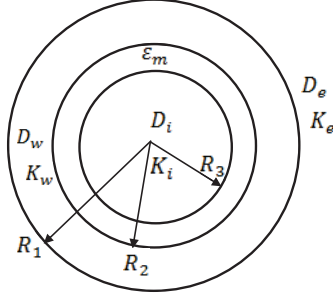


FIGURE 4.8 – Particule sphérique avec membrane non-conductrice, entourée par une paroi.

$$\sigma_j = 2n_0j\mu_j e = 2n_0jD_j \frac{e^2}{kT} \quad (4.60)$$

Les particules considérées dans les applications en électrorotation sont généralement représentées par des sphères rigides ne présentant pas de charge fixe sur leur coque externe (paroi). Il se trouve que ce modèle n'est souvent pas le plus adapté, notamment pour les cellules biologiques, compte-tenu de leur structure particulière [Ohshima 2010]. Nous traitons séparément le cas de particule avec paroi sans charges fixes et de particule présentant des charges fixes.

4.4.2.1 Modèle sans charges fixes

La non-présence de charges fixes permet l'avantage de ramener le problème de la particule avec paroi à un problème de particule homogène équivalente. L'objectif est alors de déterminer les paramètres équivalents correspondants à celle-ci, avec un système d'équation plus complexe, incluant les équations de diffusion et de convection, ainsi que les équations présentées précédemment prenant en compte les effets électrocinétiques, notamment pour la contribution électro-osmotique à sa rotation.

La détermination du modèle homogène équivalent suit un schéma relativement similaire à celui suivi pour le cas de la particule rigide sans considérations électro-osmotiques, abordé précédemment. Il donne lieu à un calcul analytique un peu plus fastidieux et qui est résumé ainsi : la conductivité équivalente de la particule est d'abord déterminée ; le potentiel électrique et la distribution de charge volumique pour la particule homogène entourée par une coque et soumise à un champ externe sont ensuite calculés ; on obtient ensuite l'expression du moment de premier ordre de la densité de charge induite autour de la particule, donnée par :

$$\gamma = \frac{-2\varepsilon_0\varepsilon_e\sigma_e(\Lambda_e a)^2}{(1 + \Lambda_e a)} \frac{\gamma^p\sigma_e - \gamma_e\sigma_p}{\gamma^p\sigma_e L_e - \gamma_e\sigma^p L^p} \left(e^{\Lambda_e a} \int_{\Lambda_e^a}^{\infty} \frac{e^{-t}}{t} \right) \left(\frac{(K)_e}{a^3} + \frac{1}{2} \right) E_0 a \quad (4.61)$$

Modèle multicouche

Considérons une particule sphérique représentée par deux sphères concentriques de rayon R_1 et R_2 (fig. B.1), avec une permittivité de la sphère interne ε_3 et une permittivité de la couche uniforme qui l'entoure ε_2 , la permittivité du milieu extérieur étant ε_1 .

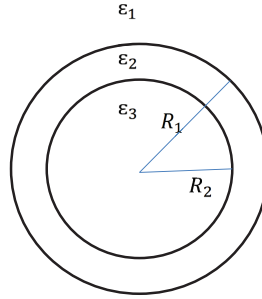


FIGURE B.1 – Modèle double-couche sphérique

Particule sphérique multicouche dans un champ uniforme

Supposons que la particule est soumise à un champ uniforme $\mathbf{E}_0 = E_0 \mathbf{z}$. L'expression du potentiel électrostatique dans chacune des trois régions du problème est donnée par :

$$U_1 = \left(-E_0 r + \frac{B}{r^2} \right) \cos \theta, \quad r \geq R_1 \quad (\text{B.1})$$

$$U_2 = \left(-Cr + \frac{D}{r^2} \right) \cos \theta, \quad R_1 \geq r \geq R_2 \quad (\text{B.2})$$

$$U_3 = -Ir \cos \theta, \quad R_2 \geq r \quad (\text{B.3})$$

En utilisant les conditions de transmission aux deux interfaces $r = R_1$ et $r = R_2$:

$$U_1 = U_2 \text{ et } \varepsilon_1 \frac{\partial U_1}{\partial r} = \varepsilon_2 \frac{\partial U_2}{\partial r}, \quad \text{en } r = R_1 \quad (\text{B.4})$$

$$U_2 = U_3 \text{ et } \varepsilon_2 \frac{\partial U_2}{\partial r} = \varepsilon_3 \frac{\partial U_3}{\partial r}, \quad \text{en } r = R_2 \quad (\text{B.5})$$

Modèle multicouche ellipsoïdal

Dans de nombreuses situations de DEP expérimentale, les cellules traitées ont une géométrie allongée et l'évaluation du moment dipolaire de la particule entourée par des couches n'est pas aussi simple que dans le cas sphérique. Généralement ce type de cellules est modélisé par des géométries ellipsoïdales, comme c'est le cas notamment des globules rouges approchés par des ellipsoïdes aplatis d'excentricité importante.

L'introduction d'un système de coordonnées ellipsoïdales en supposant que la surface extérieure est un ellipsoïde de semi-axes, a_0 , b_0 et c_0 , permet de générer une structure d'ellipsoïdes concentriques (couches concentriques) avec une épaisseur des couches qui est non uniforme [Stratton 1941, Sokirko 1992, Asami 1980] :

$$[x^2/(a_0^2 + \xi)] + [y^2/(b_0^2 + \xi)] + [c^2/(c_0^2 + \xi)] = 1, \quad (\text{B.14})$$

où ξ est un paramètre représentant une famille de surfaces d'ellipsoïdes concentriques [Stratton 1941].

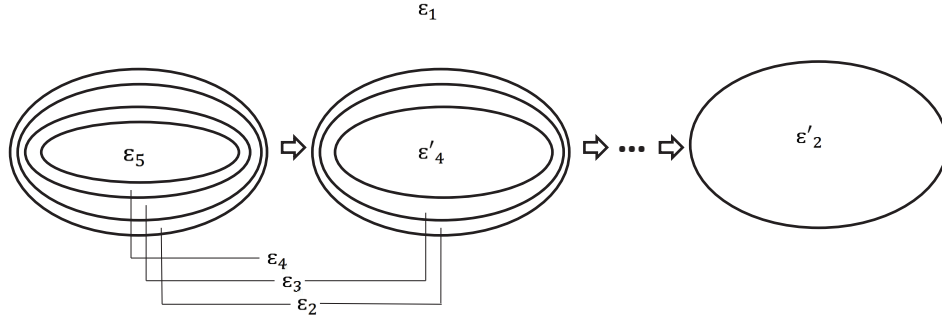


FIGURE B.2 – Illustration de la méthode "smeard-out" pour une structure d'ellipsoïdes confocales (Coupe 2D)

De façon similaire au cas de la particule multicouche sphérique, le processus "smeard-out" permet d'obtenir la permittivité équivalente pour un ellipsoïde à plusieurs couches ($n \geq 2$) (fig.B.2). Par résolution de l'équation de Laplace en coordonnées ellipsoïdales avec des conditions aux limites correspondant à la continuité de la composante normale de potentiel et la densité du vecteur déplacement au niveau des interfaces [Stratton 1941], la permittivité équivalente est donnée par ses composantes ($k = x, y, z$) par :

$$\epsilon'_{1k} = \epsilon_1 \frac{\epsilon_1 + (\epsilon_2 - \epsilon_1)[A_{1k} + \nu_1(1 - A_{0k})]}{\epsilon_1 + (\epsilon_2 - \epsilon_1)(A_{1k} - \nu_1 A_{0k})} \quad (\text{B.15})$$

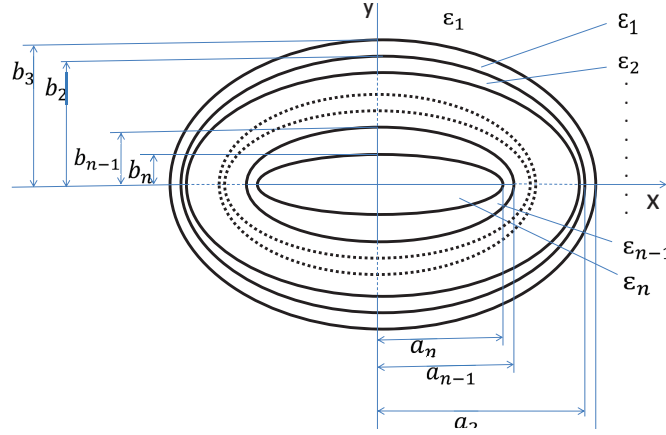


FIGURE B.3 – Structure multicouche d'ellipsoïdes confocales (Coupe 2D)

avec

$$\varepsilon'_{ik} = \varepsilon_i \frac{\varepsilon_i + (\varepsilon'_{i+1} - \varepsilon_i)[A_{ik} + \nu_i(1 - A_{i-1,k})]}{\varepsilon_i + (\varepsilon'_{i+1} - \varepsilon_i)(A_{ik} - \nu_i A_{i-1,k})} \quad i = 1, 2, \dots, n-1 \quad (\text{B.16})$$

et

$$\varepsilon'_{n-1,k} = \varepsilon_{n-1} \frac{\varepsilon_{n-1} + (\varepsilon_n - \varepsilon_{n-1})[A_{n-1,k} + \nu_{n-1}(1 - A_{n-2,k})]}{\varepsilon_{n-1} + (\varepsilon_n - \varepsilon_{n-1})(A_{n-1,k} - \nu_{n-1} A_{n-2,k})} \quad (\text{B.17})$$

$$\nu_i = \frac{a_i b_i c_i}{a_{i-1} b_{i-1} c_{i-1}} \quad i = 1, 2, \dots, n-1 \quad (\text{B.18})$$

est une quantité purement géométrique.

Les w_{ik} désigne a_i, b_i et c_i pour $k = x, y, z$ et $R_i = [(a_i^2 + \xi)(b_i^2 + \xi)(c_i^2 + \xi)]^{1/2}$ et les A_{ik} sont les facteurs de dépolarisation suivant $k = x, y$ et z et sont donnés par :

$$A_{ik} = \frac{1}{2} a_i b_i c_i \int_0^\infty \frac{d\xi}{(w_{ik} + \xi) R_i} \quad (\text{B.19})$$

Notons que ces coefficients dépendent de la géométrie de la particule et qu'ils prennent tous une seule valeur dans le cas particulier sphérique. Le second terme dans les crochets de (B.15) représente la perturbation du champ extérieur causée par la présence de l'ellipsoïde multicouche [Asami 1980].