

Mouvement induit par un potentiel périodique de basse symétrie : diélectrophorèse pulsée

Armand AJDARI et Jacques PROST

Résumé – L'application intermittente d'un potentiel spatialement périodique, mais de motif asymétrique, induit le mouvement de particules à grande échelle. Ceci permet d'envisager des méthodes de séparation sans champ d'entraînement macroscopique. Une réalisation pratique consiste à utiliser le potentiel diélectrique créé par un réseau d'électrodes.

Drift induced by a spatially periodic potential of low symmetry: Pulsed dielectrophoresis

Abstract – A test particle submitted to a low symmetry potential periodic in space and intermittent in time undergoes a macroscopic drift. This may lead to separation methods free of macroscopic driving fields. The dielectric potential created by arrays of electrodes could be used as a practical example.

Abridged English Version – We consider the 1d evolution of a particle in a potential $U(x, t)$ ruled by the Fokker-Planck equation (1), and concentrate on the case of a sawtooth potential (see Fig. 1) applied in pulses of duration τ_2 separated by free periods ($U=0$) of duration τ_1 . To get a simple picture we moreover focus on a specific regime (I b): trapping during the pulses is strong, and τ_2 is chosen so that during a pulse a particle has time to fall down into the closest valley, but not to hop to a neighbouring site (pulses shorter than a typical thermally activated detrapping time).

At the end of the pulse the particle diffuses freely. The probability that it has moved through a distance x when the next pulse starts is given by (3). Then again it slips down the slope at position x into the corresponding valley. During a period ($\tau_1 + \tau_2$) the particle has thus the possibility to move by an integer number of valleys m , with probability $P(m)$ given by (4).

This random walk process leads to a macroscopic drift characterized by a macroscopic velocity V_m and a diffusion coefficient D_m (5), which depend on the microscopic diffusion coefficient D^0 , allowing separation according to this parameter. Analytical expressions for V_m and D_m can be obtained in certain regimes (7) and (8) (9), numerical results are shown in Figure 2.

Separation of species of slightly different diffusion coefficients, say D^0 and $D^0 + \delta D^0$, is achieved after a time t^* (10). For particles of size r in a solvent of viscosity similar to that of water, calculation leads to the numerical estimate (11), with t^* , a , and r expressed respectively in hours, millimeters and microns.

The present approach may lead to flexible devices (optimization is achieved through the choice of τ_1) with no imposed macroscopic driving field.

Extending the analysis out of the specific regime (I b), one expects the mobility of a particle to depend on the potential U_0 (and therefore on the polarisability of the particle in the case of a dielectric potential [1]). A very selective modification of the potential can also be induced optically, leading to very efficient separation.

Note présentée par Pierre-Gilles de GENNES.

INTRODUCTION. — Dans cette Note nous montrons que l'application intermittente d'un potentiel spatialement périodique mais de basse symétrie induit la dérive spatiale d'une particule. Ceci permet d'envisager une séparation fine de particules différant par leur coefficient de diffusion.

En particulier ce formalisme s'applique à la situation pratique suivante [1] : un réseau d'électrodes adressées par un champ alternatif $E(x)$ permet de créer pour une particule de polarisabilité α un potentiel périodique $U(x) = -1/2 \alpha E^2$ tendant à attirer la particule dans les zones de champ intense [2]. Ce potentiel étant spatialement périodique, il ne peut provoquer une migration macroscopique en l'absence de dissipation. Nous montrons que si l'adressage est pulsé, on peut obtenir une dérive macroscopique dont l'amplitude dépend du coefficient de diffusion de la particule.

I. DESCRIPTION DU MOUVEMENT. — Ia. *Modèle.* — Considérons l'évolution unidimensionnelle d'une particule décrite par l'équation de Fokker-Planck:

$$(1) \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial P}{\partial t}(x, t) = -\text{div } \mathbf{J}(x, t) \\ \mathbf{J}(x, t) = \frac{D^0}{kT} P(x, t) \mathbf{F}(x, t) - D^0 \text{ grad } P(x, t) \end{array} \right.$$

où P est la densité de probabilité de présence de la particule, \mathbf{J} le courant associé, D^0 le coefficient de diffusion, et où la force \mathbf{F} dérive du potentiel $U(x, t)$.

Nous considérons le cas où la dépendance temporelle du potentiel a la forme d'un créneau (champ « pulsé ») :

$$(2) \quad \left\{ \begin{array}{l} U(x, t) = 0 \quad \text{pour } n(\tau_1 + \tau_2) \leq t \leq n(\tau_1 + \tau_2) + \tau_1 \\ U(x, t) = U_0(x) \quad \text{sinon.} \end{array} \right.$$

De plus, U_0 est spatialement périodique mais asymétrique, un cas typique étant le potentiel « en dents de scie » de la figure 1, qui définit les paramètres a , b et $\Delta \mathcal{E}$.

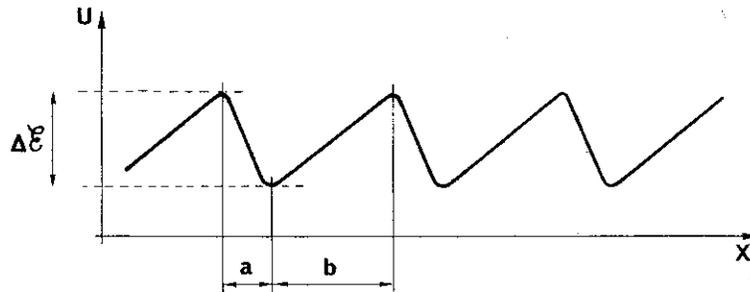


Fig. 1. — Modèle de potentiel périodique et asymétrique : dents de scie.

Fig. 1. — A typical periodic but asymmetric potential: sawtooth profile.

Ib. *Régime considéré.* — Pour pouvoir plus simplement décrire les mécanismes à l'œuvre nous nous limitons au régime délimité par les hypothèses suivantes [3] :

- Le piégeage pendant une impulsion est fort : $\Delta \mathcal{E} \gg kT$.
- La durée τ_2 des impulsions est telle que les particules qui se trouvent dans le bassin d'attraction d'un piège au début d'une impulsion aient le temps de tomber au fond de ce piège, mais pas d'en sortir.

Ic. *Mouvement induit.* — Les hypothèses du paragraphe précédent imposent qu'au cours d'une impulsion, la particule va au fond du piège dans la zone d'attraction duquel elle se trouvait au début de la période. Pendant la période de potentiel plat suivante elle

diffuse librement pendant τ_1 pour atteindre une position x , avec une probabilité donnée par la densité :

$$(3) \quad p(x) = (4\pi D^0 \tau_1)^{-1/2} \exp\left(-\frac{x^2}{4D^0 \tau_1}\right)$$

Au cours de l'impulsion suivante elle tombe dans le fond du piège dont la zone d'attraction englobe la position x . Au cours d'une période elle s'est donc déplacée d'un piège à un autre. Plus quantitativement, la probabilité pour qu'elle aie « progressé de m pièges » pendant cette période (durée $\tau_1 + \tau_2$) est :

$$(4) \quad P(m) = \int_{b+(m-1)(a+b)}^{b+m(a+b)} p(x) dx$$

On a donc à grande échelle un processus de marche aléatoire unidimensionnelle. Le théorème de la limite centrale montre que le mouvement est caractérisé par une vitesse et un coefficient de diffusion macroscopiques :

$$(5) \quad V_m = \langle x \rangle / (\tau_1 + \tau_2); \quad D_m = (\langle x^2 \rangle - \langle x \rangle^2) / 2(\tau_1 + \tau_2)$$

qui s'obtiennent à partir des deux premiers moments de la loi (4) :

$$(6) \quad \langle x \rangle = \sum_{m=-\infty}^{\infty} m(a+b)P(m); \quad \langle x^2 \rangle = \sum_{m=-\infty}^{\infty} m^2(a+b)^2 P(m)$$

Régime de diffusion rapide : $(4D^0 \tau_1) \gg (a+b)^2$. — Dans ce régime, pendant une période de potentiel plat, la particule diffuse librement sur un très grand nombre de motifs. On obtient [3] :

$$(7) \quad V_m = 1/2(a-b)/(\tau_1 + \tau_2); \quad D_m = D^0 \tau_1 / (\tau_1 + \tau_2)$$

Ce régime est bien sûr peu intéressant pour une séparation puisque le déplacement moyen est essentiellement géométrique, et donc indépendant des caractéristiques des particules.

Régime de diffusion lente : $(4D^0 \tau_1) \ll (b-a)^2$. — La probabilité qu'a une particule de diffuser en τ_1 sur une distance b est négligeable. On a donc approximativement une loi bimodale :

$$(8) \quad P(m) \cong \delta_{m,-1} p + \delta_{m,0} (1-p); \quad p \cong \frac{1}{2} \operatorname{Erfc}[a/(4D^0 \tau_1)^{1/2}]$$

d'où :

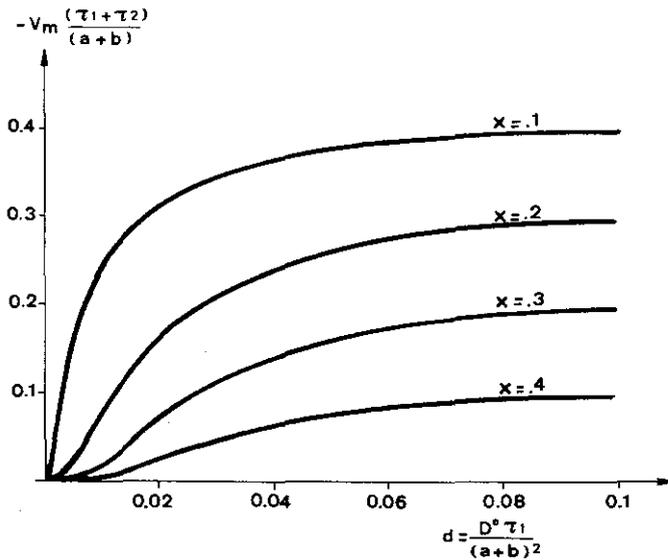
$$(9) \quad V_m = -p(a+b)/(\tau_1 + \tau_2); \quad D_m = p(1-p) \frac{1}{2} (a+b)^2 / (\tau_1 + \tau_2)$$

Dans ce cas la vitesse moyenne dépend « exponentiellement » du coefficient de diffusion, ce qui permet une séparation fine.

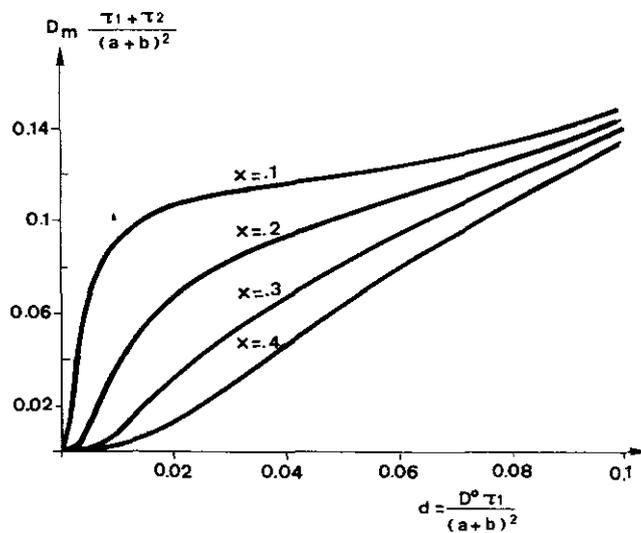
Cas général. — Nous présentons (fig. 2a et 2b) les courbes obtenues à partir des équations (4) à (6). Le résultat numérique est cohérent avec la description précédente des régimes limites.

II. SÉPARATION. — Une mesure de la qualité de séparation est le temps requis pour pouvoir distinguer deux taches de diffusion correspondant à des particules de coefficient D^0 et $D^0 + \delta D^0$:

$$(10) \quad t^* = \frac{2D_m}{D^{02} (\partial V_m / \partial D^0)^2} (D^0 / \delta D^0)^2$$



(a)



(b)

Fig. 2. — Représentation en unités réduites de la vitesse (2 a) et du coefficient de diffusion (2 b) macroscopiques en fonction des paramètres adimensionnels $x = a/(a+b)$ et $d = D^0 \tau_1 / (a+b)^2$ caractérisant l'asymétrie du potentiel et la durée des périodes libres.

Fig. 2. — Reduced macroscopic velocity (2 a) and diffusion coefficient (2 b) as functions of the dimensionless parameters $x = a/(a+b)$ and $d = D^0 \tau_1 / (a+b)^2$ characterizing the asymmetry of the potential and the duration of the "free periods".

Pour une séparation efficace il faut une variation importante de la vitesse en fonction du paramètre distinguant les espèces à séparer, mais également une faible dispersion D_m . Quelques remarques s'imposent :

— Pour une valeur de D^0 et une asymétrie $x = a/(a+b)$ données l'optimisation s'effectue par le réglage de τ_1 . Ce réglage est extrêmement simple dans le cas d'un réseau d'électrodes, ce qui confère à la méthode une grande flexibilité : un même dispositif peut être utilisé pour une grande gamme de séparation [3].

— Pour des particules colloïdales sphériques dans un solvant de viscosité η comparable à celle de l'eau, dont le coefficient de diffusion varie en raison inverse du rayon r : $D^0 = kT/6\pi\eta r$, l'optimum obtenu dans le régime de diffusion lente donne en ordre de grandeur :

$$(11) \quad t^* \cong 1500 ra^2 (\delta r/r)^{-2}$$

où t^* est exprimé en heures, a en millimètres et r en microns. Pour a de l'ordre du micron, ce qui est raisonnable du point de vue de la microélectronique, il faut donc \cong un jour séparer à 1 % près des particules de taille $r \cong 1 \mu\text{m}$. L'estimation (11) s'applique

également aux polyélectrolytes de grande taille (une chaîne d'ADN de un million de paires de bases est une pelote d'un rayon de l'ordre du micron). Il en va de même pour les chromosomes et les cellules de taille similaires.

— En plus de sa flexibilité, cette méthode permet un fonctionnement en continu, et dispense d'avoir à imposer un champ de dérive sur l'ensemble du dispositif, comme c'est le cas en électrophorèse ou en chromatographie.

III. DISCUSSION. — Rappelons tout d'abord que pour simplifier le calcul nous nous sommes limités à un régime particulier (*I b*). De façon plus générale le mouvement dépend du coefficient de diffusion mais également du potentiel U_0 . Dans le cas d'un potentiel diélectrique $U_0(x) = -1/2 \alpha E^2(x)$ imposé par un réseau d'électrodes, on s'attend donc à ce que la mobilité d'une particule dépende de sa polarisabilité α . Les potentialités de séparation n'en sont que plus riches.

— Une variation de potentiel (additionnée en général d'une variation de mobilité) peut être provoquée de façon extrêmement sélective par voie optique. Des considérations semblables à celles développées ici s'appliquent et une séparation très fine est attendue.

Plus généralement, le mouvement induit, dans une géométrie de basse symétrie, par l'absorption d'énergie ou par des régimes transitoires imposés artificiellement, semble un sujet prometteur.

Note remise le 4 août 1992, acceptée le 23 octobre 1992.

RÉFÉRENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] A. AJDARI et J. PROST, *Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A.*, 88, 1991, p. 4468-4471.
- [2] H. A. POHL, *Dielectrophoresis*, Cambridge University Press, Cambridge, 1978.
- [3] A. AJDARI, *Thèse de doctorat*, Université Paris-VI, 1992.

*Laboratoire de Physico-Chimie théorique,
E.S.P.C.I., 10, rue Vauquelin, 75231 Paris Cedex 05.*