Table des matières

1. Introduction . . . 1

2. Pinces optiques et dispositif expérimental . . . 2

2.1. Pinces optiques . . . 2
2.2. Détection . . . 2

3. Modélisation d'une particule brownienne par l'équation de Langevin et simulations de dynamique moléculaire . . . 3

3.1. L'équation de Langevin . . . 3
3.2. Diffusion libre . . . 4
3.3. Comparaison avec le mouvement brownien en dynamique moléculaire . . . 5
3.4. Simulation de l'équation de Langevin . . . 5
3.5. Résultats : diffusion libre . . . 6
3.5.1. Dynamique moléculaire . . . 6
3.5.2. Simulation de l'équation de Langevin . . . 8
3.6. Mouvement dans un puits de potentiel harmonique . . . 9

4. Recherche d'une cible par diffusion . . . 11

4.1. Diffusion sans et avec réinitialisation, temps de premier passage . . . 11
4.1.1. Sans réinitialisation . . . 11
4.1.2. Avec réinitialisation poissonienne . . . 13
4.1.3. Avec réinitialisation périodique . . . 15
4.2. Temps de premier passage pour une cible 1D à variance finie . . . 15
4.3. Temps de premier passage pour une cible 2D à variance finie . . . 17
4.3.1. Probabilité de survie sans réinitialisation . . . 17
4.3.2. Réinitialisation poissonienne . . . 18
4.3.3. Réinitialisation périodique . . . 20

5. Conclusion . . . 22

Bibliographie . . . 22

1. Introduction

La recherche par intermittence est une classe de méthodes de recherche d'une cible dans l'espace, qui consiste à alterner des phases de recherche et des phases de déplacement de grande amplitude.

De nombreux exemples existent dans la nature : certains animaux recherchent leur proie en déplacement constant, d'autres ne se déplacent que très peu, mais une grande partie des animaux alternent déplacement et recherche; une biomolécule cherchant un site particulier sur l'ADN "diffuse" le long de l'ADN, mais se détache parfois pour explorer une zone totalement différente, accélérant ainsi grandement le processus; enfin, les êtres humains cherchent souvent des objets leur habitat (des clés par exemple), et repartent souvent d'un endroit initial après une recherche infructueuse.

En effet, une recherche où l'on repart de temps en temps à zéro peut être plus efficace, comme l'illustre le modèle étudié pendant ce stage : une particule brownienne diffusant à la recherche d'une cible et repartant occasionnellement de l'origine (la *réinitialisation*).

Une partie des travaux présentés ici a été effectuée en préparation d'un stage qui se voulait en partie expérimental, portant sur des aspects hors-équilibre plus fondamentaux du mouvement brownien. L'impossibilité de se déplacer à Lyon a changé les plans, et on ne s'étonnera pas d'un certain manque de cohérence dans les travaux présentés. Le stage s'est déroulé dans l'équipe de S. Cilibeto, directeur de recherche à l'ENS Lyon, avec l'aide de S. N. Majumdar du LPTMS pour les calculs théoriques de temps de premier passage moyen en 2D.

Avec le dispositif expérimental ici décrit, S. Cilibeto étudie de nombreux problèmes de physique statistique hors équilibre : étude des transitions liquide-gel, micro-rhéologie, théorèmes de fluctuation-dissipation généralisés et non-stationnaires, *shortcuts to adiabaticity*, réalisation expérimentale d'un démon de Maxwell, vérification du principe de Landauer...

2. Pinces optiques et dispositif expérimental

Cette section décrit succinctement le dispositif expérimental utilisé par l'équipe de S. Ciliberto pour étudier le mouvement brownien d'une particule sphérique de silice dans un liquide, et pour contraindre son mouvement avec une *pince optique*.

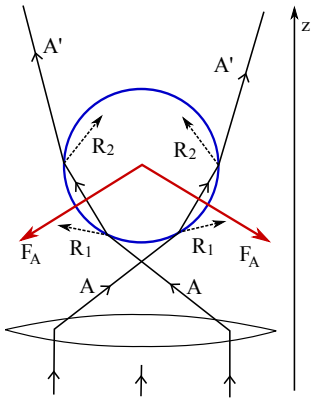
2.1. Pinces optiques

Les pinces optiques permettent de piéger et déplacer des particules diélectriques grâce à l'interaction avec la lumière. Lorsqu'un faisceau laser de longueur d'onde λ et d'intensité $I(\vec{x})$ traverse une particule transparente d'indice de réfraction $n > n_{\text{extérieur}}$ et de rayon R, celle-ci subit deux forces [berut] :

- La *pression de radiation*, qui s'exerce dans la direction de propagation $\vec{e}_z$ de la lumière. Dans le régime de Rayleigh où $R \ll \lambda$, on a $\vec{F}_{\text{p.rad.}} = \frac{I}{c}\,\frac{128\,\pi^5\,\alpha^2}{3\,\lambda^4\,n_{\text{ext}}}\,\vec{e}_z$, où $\alpha = n_{\text{ext}}^2\,R^3\,\frac{(n/n_{\text{ext}})^2-1}{(n/n_{\text{ext}})^2+1}$ est la polarisabilité de la particule.
- La *force de gradient*, qui s'exerce dans la direction où l'intensité lumineuse est la plus grande.

  Dans la régime de Rayleigh, on a $\vec{F}_{\text{grad}} = \frac{2\pi\,\alpha}{c\,n_{\text{ext}}^2}\,\vec{\nabla} I$.

  Dans le régime de Mie ($R \gg \lambda$), cette force se comprend bien dans le cadre de l'optique géométrique, en utilisant les lois de la réfraction et le principe d'action-réaction : lorsqu'un rayon lumineux est dévié, par conservation de la quantité de mouvement (somme de celle de la particule et des photons) la particule subit une force, comme illustré à droite (extrait de [berut]).



Dans une pince optique, la particule est proche du centre d'un faisceau laser fortement concentré (pour que $\vec{\nabla} I$ soit grand), et est donc attirée vers le centre, à condition que la pression de radiation ne domine pas. La position d'équilibre de la particule résulte de l'équilibre des deux forces. Lorsque la particule est proche de cette position, la force subie est approximativement harmonique : $\vec{F} \simeq -k_r\,\vec{r} + k_z\,z\,\vec{e}_z$, où $\vec{r}$ est le vecteur-position dans le plan perpendiculaire à la direction de propagation de la lumière. Les constantes k_r et k_z peuvent en théorie s'exprimer à partir des paramètre du faisceau et de la particule, mais il est plus simple de calibrer k_r en l'extrayant de la statistique du mouvement de la particule (cf. 3.6).

2.2. Détection

Pour étudier le mouvement de la particule, qu'elle soit libre ou soumise à la pince optique, sa position dans le plan perpendiculaire à $\vec{e}_z$ est mesurée par un détecteur optique de position, le QPD (pour *quadrant position detector*, ou PSD pour *position sensitive diode*), qui est une sorte de photodiode permettant de mesurer la position du centroïde de l'intensité lumineuse sur son plan[1].

1. https://en.wikipedia.org/wiki/Position_sensitive_device#Isotropic_Sensors

En plus du faisceau de la pince optique, on éclaire faiblement la particule par un faisceau laser concentré en un point légèrement décalé du centre de la pince optique, comme illustré sur la figure 1. La particule de silice joue alors le rôle d'une micro-lentille, et par un jeu de lentilles, permet de focaliser le faisceau sur le QPD. Lorsque la particule se déplace, le point de focalisation sur le QPD se déplace aussi, de façon linéaire tant que la particule reste proche du centre, et quasiment indépendamment de z, permettant ainsi de mesurer $\vec{r}$. Le signal électrique du QPD permet de déterminer $\vec{r}=(x,y)$ à un facteur de proportionnalité près.

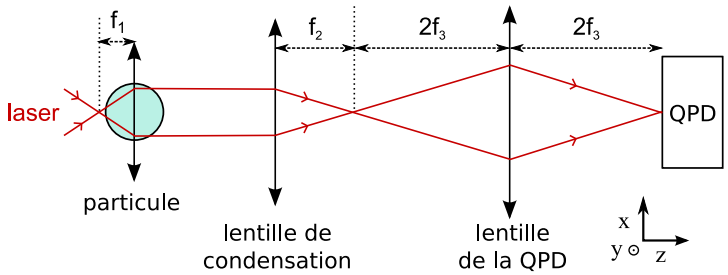


Figure 1. Schéma optique du dispositif de détection. Le laser de piégeage, filtré, n'atteint pas le QPD.

3. Modélisation d'une particule brownienne par l'équation de Langevin et simulations de dynamique moléculaire

Dans la plupart des expériences, le mouvement d'une particule brownienne est modélisé par l'équation de Langevin, décrivant la dynamique de la position $\vec{x}(t)$ ou de la vitesse $\vec{v}(t)$ (ou plus généralement de toute variable dite *lente*) comme une variable stochastique, c'est-à-dire différente d'une réalisation à une autre.

3.1. L'équation de Langevin

L'équation de Langevin pour une particule brownienne de masse m, de position $\vec{x}(t)$ et de vitesse $\vec{v}=\frac{\mathrm{d}\vec{x}}{\mathrm{d}t}$, soumise à une force extérieure $\vec{f}_{\text{ext}}(x,t)$ macroscopique et déterministe, s'écrit

$$m\frac{\mathrm{d}\vec{v}}{\mathrm{d}t}=\vec{f}_{\text{ext}}-\gamma\,\vec{v}+\vec{\eta}(t) \tag{1}$$

qui a l'apparence d'une équation de Newton avec une force de freinage $-\gamma\,\vec{v}$, à laquelle s'ajoute une *force aléatoire* $\vec{\eta}(t)$ de distribution gaussienne, de moyenne nulle et vérifiant

$$\big\langle \eta_i(t)\,\eta_j(t+\delta t)\big\rangle \;=\; 2\gamma\,k_{\mathrm{B}}T\;\delta_{ij}\,\delta(\delta t)\quad \forall t \tag{2}$$

(où les crochets $\langle\cdot\rangle$ dénotent la moyenne sur l'ensemble des réalisations). Autrement dit, il n'y a pas de corrélation entre la force en deux instants différents : il s'agit d'un *bruit gaussien blanc*, d'amplitude définie uniquement par γ et par la température T, et donc indépendante de $\vec{v}$.

En 3D et pour une particule sphérique de rayon R suffisamment grosse, on a usuellement $\gamma=6\pi\,\mu\,R$, où μ est la viscosité dynamique du liquide. Pour les particules de silice utilisées expérimentalement ($R\approx 1\,\mu\mathrm{m}$), dans de l'eau à température ambiante ($\gamma\approx 10^{-8}\,\mathrm{kg\cdot s^{-1}}$), l'inertie de la particule est tout à fait négligeable, car $\tau^{-1}=\gamma/m\approx 1\,\mathrm{MHz}$ est bien plus grand que la fréquence d'acquisition de $50\,\mathrm{kHz}$. Dans ce cas, on utilise l'*équation de Langevin sur-amortie*

$$0=\vec{f}_{\text{ext}}-\gamma\,\vec{v}+\vec{\eta}(t)$$

L'équation de Langevin existe sous une forme bien plus générale, décrivant la dynamique de variables *lentes* d'un système hamiltonien soumis à un bain thermique, et se justifie sous les hypothèses suivantes [dengler] :

- existence d'échelles de temps bien séparées, permettant l'existence de variables lentes orthogonales aux variables rapides (il reste au physicien de postuler le caractère lent d'une observable)

– ensemble canonique ou micro-canonique et hypothèse ergodique

En toute rigueur, le caractère blanc et gaussien de la force fluctuante ne peut être que postulée (on parle d'approximation markovienne). On comprend toutefois bien qu'il s'agit d'une somme d'un grand nombre contributions aléatoires, donc gaussien par le théorème central limite, et blanc à l'échelle de temps bien supérieure au temps caractéristique de ces contributions (*chocs moléculaires* pour le mouvement brownien).

Dans les deux sections suivantes, on donne quelques résultats théoriques que l'on comparera ensuite avec les simulations.

3.2. Diffusion libre

On regarde tout d'abord le cas où il n'y a pas de force externe. L'équation de Langevin $m\frac{\mathrm{d}\vec{v}}{\mathrm{d}t}=-\gamma\vec{v}+\vec{\eta}(t)$ s'intègre formellement[2] en

$$\vec{v}(t) \,=\, \vec{v}_0\,\mathrm{e}^{-\frac{t}{\tau}}+\tfrac{1}{m}\int_0^t \mathrm{d}t'\,\mathrm{e}^{-\frac{t-t'}{\tau}}\,\vec{\eta}(t') \quad \text{avec} \quad \tau=\frac{m}{\gamma} \tag{3}$$

que l'on peut intégrer une seconde fois pour obtenir (sous l'hypothèse que $\vec{x}(0)=\vec{0}$)

$$\vec{x}(t) \,=\, \int_0^t \mathrm{d}t'\,\vec{v}(t') \,=\, \vec{v}_0\,\tau\left(1-\mathrm{e}^{-t/\tau}\right) \,+\, \tfrac{1}{m}\int_0^t \mathrm{d}t'\int_0^t \mathrm{d}t''\,\mathrm{e}^{-\frac{t'-t''}{\tau}}\,\vec{\eta}(t'') \tag{4}$$

Puisque $\left\langle\vec{\eta}(t)\right\rangle=\vec{0}$, et en supposant que la vitesse initiale est déterminée ($\vec{v}_0$ n'est pas distribuée), on obtient directement que la position moyenne évolue comme

$$\left\langle\vec{x}(t)\right\rangle \,=\, \left(1-\mathrm{e}^{-t/\tau}\right)\tau\,\vec{v}_0$$

Le temps $\tau=m/\gamma$ est ainsi le temps caractéristique de relaxation du mouvement de la particule brownienne.

Pour une vitesse initiale nulle (ou distribuée avec une moyenne nulle), $\left\langle\vec{x}(t)\right\rangle=\vec{0}$: la particule reste centrée sur sa position initiale. Regardons alors la dispersion de sa position, $\left\langle\vec{x}^2(t)\right\rangle$. En remarquant que $\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}\left\langle\vec{x}^2\right\rangle=2\left\langle\vec{v}\cdot\vec{x}\right\rangle$ puis en injectant (3) et (4) avec $\vec{v}_0=\vec{0}$, et enfin en utilisant la relation (2), on obtient après un calcul fastidieux

$$\left\langle\vec{x}^2(t)\right\rangle \,=\, 2\,d\,\frac{k_\mathrm{B}T}{\gamma}\left(t-2\tau\left(1-\mathrm{e}^{-t/\tau}\right)+\tfrac{1}{2}\tau\left(1-\mathrm{e}^{-2t/\tau}\right)\right) \tag{5}$$

où d est la dimension spatiale. Pour des temps $t\gg\tau$, la dispersion atteint la forme asymptotique

$$\left\langle\vec{x}^2(t)\right\rangle \underset{t\gg\tau}{\simeq} 2\,d\,D\,t \quad \text{avec} \quad D=\frac{k_\mathrm{B}T}{\gamma} \tag{6}$$

le *coefficient de diffusion*. Autrement dit, au après un temps t, la particule brownienne s'est éloignée d'une distance moyenne $\sqrt{2\,d\,D\,t}$. Un tel comportement est dit *diffusif*. La particule diffuse d'autant plus vite que la température du bain est élevée, et d'autant plus lentement que le coefficient de freinage γ est élevé.

Il existe un calcul plus simple, qui nécessite toutefois d'établir la fonction d'auto-corrélation de la vitesse $\left\langle\vec{v}(t)\cdot\vec{v}(t')\right\rangle=\frac{d\,k_\mathrm{B}T}{m}\,\mathrm{e}^{-|t'-t|/\tau}$ [aslangul] au préalable :

$$\begin{aligned}\left\langle\vec{x}^2(t)\right\rangle \;&=\; \left\langle\int_0^t \mathrm{d}t'\,\vec{v}(t')\cdot\int_0^t \mathrm{d}t'\,\vec{v}(t')\right\rangle \,=\, \int_0^t \mathrm{d}t'\int_0^t \mathrm{d}t''\,\left\langle\vec{v}(t')\cdot\vec{v}(t'')\right\rangle \\ &=\; \tfrac{d\,k_\mathrm{B}T}{m}\int_0^t \mathrm{d}t'\int_0^t \mathrm{d}t''\,\mathrm{e}^{-\frac{|t'-t''|}{\tau}} \,=\, \tfrac{k_\mathrm{B}T\,d}{m}\,2\,\tau\left(t+\tau\left(\mathrm{e}^{-t/\tau}-1\right)\right)\end{aligned}$$

2. En réalité, l'équation de Langevin sous la forme (1) n'est pas définie mathématiquement (hormis dans le cadre de la théorie des équations différentielles stochastiques) pour la simple raison qu'**une trajectoire brownienne n'est pas différentiable** ($\partial_t\vec{v}$ n'existe pas). *Seule la forme intégrale (3) a un sens*, et la forme (1) n'est qu'une écriture pratique et familière au physicien.

d'où le résultat, qui diffère de (5),

$$\left\langle \vec{x}^2(t) \right\rangle = 2\,d\,\frac{k_\mathrm{B}T}{\gamma}\left(t + \tau\left(\mathrm{e}^{-t/\tau} - 1\right)\right) \tag{7}$$

La différence provient du fait que l'ensemble des trajectoires sur lequel on moyenne est différent : on suppose ici que $\left\langle \vec{v}_0^2 \right\rangle = \left\langle \vec{v}^2(t \to \infty) \right\rangle = \frac{d\,k_\mathrm{B}T}{m}$ (au lieu de $\vec{v}_0 = \vec{0}$) en utilisant la fonction d'auto-corrélation de la vitesse, établie dans le régime stationnaire. Autrement dit, la particule brownienne est déjà à l'équilibre thermique au temps initial, ce qui est en quelque sorte plus réaliste.

3.3. Comparaison avec le mouvement brownien en dynamique moléculaire

Il est bon de vérifier précisément au moins une fois dans sa vie les hypothèses et les prédictions de l'équation de Langevin. Étant familier avec les simulations de dynamique moléculaire, j'ai décidé de simuler le mouvement d'une particule dans un liquide de Lennard-Jones en 2 dimensions.

On place N particules (typiquement 800) classiques, de positions $\left\{\vec{x}_i(t)\right\}$, soumises à l'équation de Newton, dans un conteneur circulaire (de diamètre de l'ordre de l'unité). Leurs interactions sont modélisées par le potentiel de Lennard-Jones

$$u_\mathsf{LJ}(\vec{x}_i, \vec{x}_j) \;=\; 4\,\epsilon_0\left(\left(\frac{d_0}{r}\right)^{12} - \left(\frac{d_0}{r}\right)^{6}\right)$$

avec $r = \|\vec{x}_j - \vec{x}_i\|$.

On place une grosse particule (qu'on nomme "particule brownienne") de masse grande par rapport à celle des particules du liquide (typiquement 10 ou 100 fois) et de diamètre d_part,

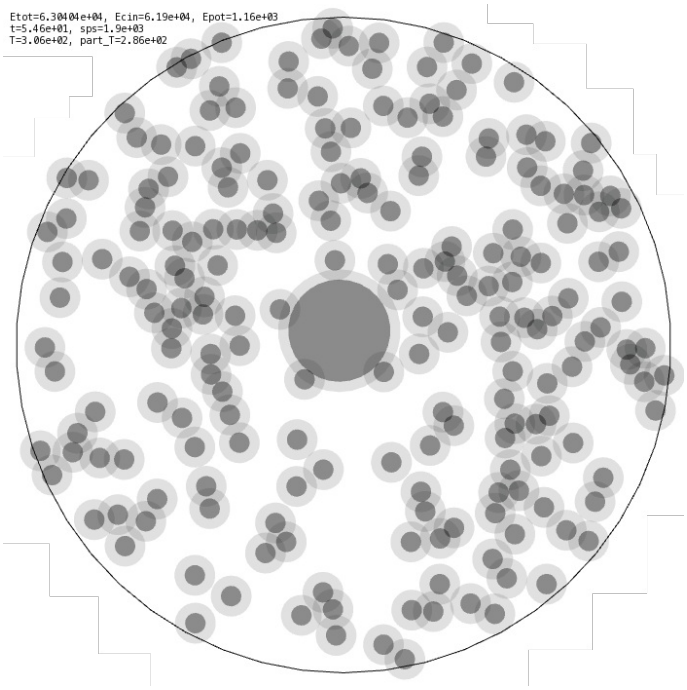


Figure 2. Gaz de Lennard-Jones avec $N = 200$ particules. Au centre, la particule brownienne.

qui interagit avec les autres particules à travers le même potentiel, mais avec $r = \|\vec{x}_i - \vec{x}_\mathsf{part}\| + d_\mathsf{part}$.[3]

Les positions successives, séparées par un pas de temps Δt, sont approximées avec un intégrateur de type méthode de Verlet [kuraev], de sorte que l'énergie est conservée durant toute la simulation à 10^{-5} (relatif) près, une fois la température désirée atteinte. La simulation est donc faite dans l'ensemble microcanonique, mais le bain est censé être suffisamment grand pour jouer le rôle de thermostat pour la particule brownienne[4].

3.4. Simulation de l'équation de Langevin

D'un autre côté, on se propose de simuler le mouvement d'un particule brownienne avec l'équation de Langevin directement, ce qui est bien plus rapide que simuler une trajectoire en dynamique moléculaire. Ces vérifications sont judicieuses car le code sera utilisé dans la seconde partie de ces travaux sur la recherche de cible.

3. Ici, la masse des particules de liquide est $m = 1$, le conteneur est de l'ordre de l'unité, et on prend $d_0 = 0.03$, $\epsilon_0 = 2$, ainsi que $d_\mathsf{part} = 0.06$. Dans toute cette section, on travaille avec des nombres sans dimensions, proches de l'unité.

4. La température est déterminée par équirépartition (et ergodicité, $\langle\cdot\rangle_t$ dénotant la moyenne temporelle) :

$$\langle E_\mathsf{cin,tot}\rangle_t = \left\langle \sum_i \tfrac{1}{2}\,m_i\,\vec{v}_i^2 \right\rangle_t = \frac{N_\mathsf{d.o.f.}}{2}\,k_\mathrm{B}T \quad \text{avec} \quad N_\mathsf{d.o.f.} = 2_{(2\mathrm{D})} \times \left(N + 1_{(\text{part. brow.})} + 1_{(\text{conteneur})}\right)$$

Le fluide est bien thermalisé car on vérifie que la distribution des vitesses est bien maxwellienne pour la température T mesurée.

L'équation de Langevin en 2D se discrétise[5] sur un pas de temps Δt de la façon suivante :

$$\begin{cases} m\,\dfrac{\Delta\vec{v}[t]}{\Delta t} = -\gamma\,\vec{v}[t] + \vec{f}_{\text{ext}}(\vec{x}[t]) + \vec{\eta}[t] \\ \vec{x}[t+\Delta t] = \vec{x}[\Delta t] + \vec{v}[t]\,\Delta t \end{cases} \quad \text{avec} \quad \eta_{x,y}[t] = \sqrt{\frac{2\,\gamma\,k_{\mathrm{B}}T}{\Delta t}}\,\mathcal{N}_t(0,1)$$

où $\Delta\vec{v}[t] = \vec{v}[t+\Delta t] - \vec{v}[t]$ et où "$\mathcal{N}_t(0,1)$" est un tirage (décorrélé des tirages aux autres t pour obtenir un bruit blanc) sur une distribution gaussienne de moyenne nulle et d'écart-type 1.

Le code C++ est disponible à l'adresse `https://github.com/xif-fr/BrownianMotion/blob/master/langevin.cpp`.

3.5. Résultats : diffusion libre

Tous les paramètres étant fixés, on simule un ensemble de réalisations (quelques centaines de trajectoires) pour déterminer les propriétés statistiques du mouvement de la particule brownienne, avec l'équation de Langevin et en dynamique moléculaire.

3.5.1. Dynamique moléculaire

Initialement, la particule brownienne est confinée très près du centre du conteneur par un fort potentiel, le temps que le bain se thermalise. La particule est ensuite lâchée en supprimant le potentiel. À partir des trajectoires, on détermine τ et D en ajustant (7) sur $\langle\vec{x}^2\rangle(t)$. On obtient un bon accord (fig. 3).

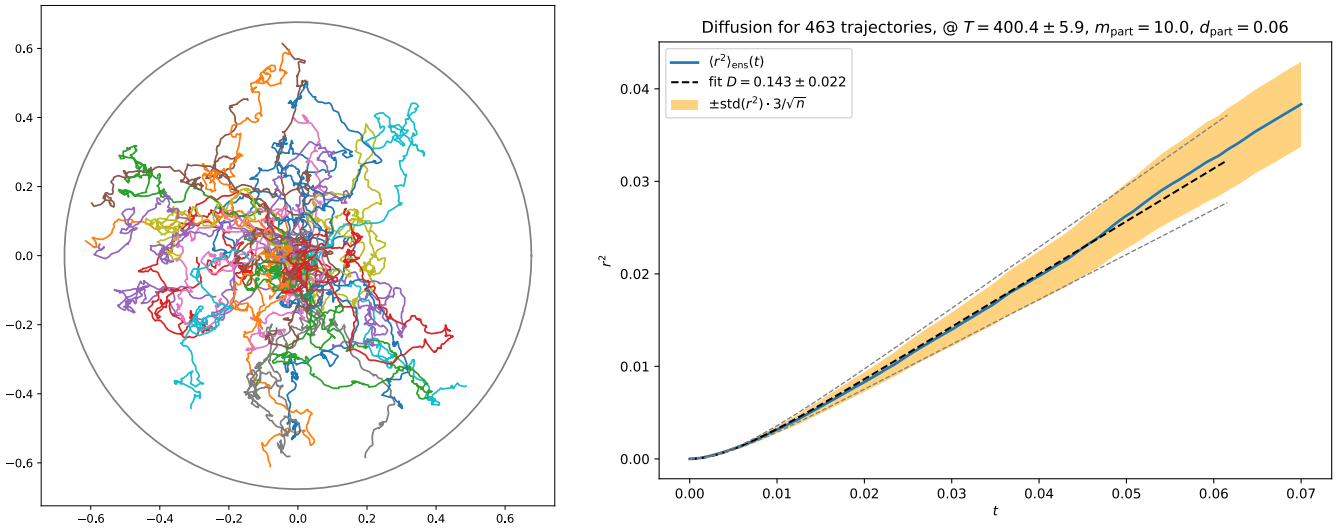


Figure 3. À **gauche**, quelques trajectoires de la particule brownienne; le cercle représente le conteneur, qui est évidemment une entrave à la diffusion libre de la particule, ce qui impose de limiter à des temps assez courts pour éviter son influence. À **droite**, dispersion de la distance de la particule au centre en fonction du temps (en bleu; et l'incertitude à 3σ en orange), et ajustement de la courbe théorique (en pointillés, avec son incertitude en gris). On obtient ici $D = 0.08 \pm 13\%$ et $\tau = 0.011 \pm 7\%$.

En étudiant la dépendance en température du coefficient de diffusion D, on se rend compte que celui-ci n'est pas proportionnel à T (fig. 4), même si il augmente bien avec la température.

5. En passant par la forme intégrale (3). On peut dire qu'il s'agit de la méthode l'Euler appliquée à l'équation de Langevin, même s'il s'agit d'un abus de langage.

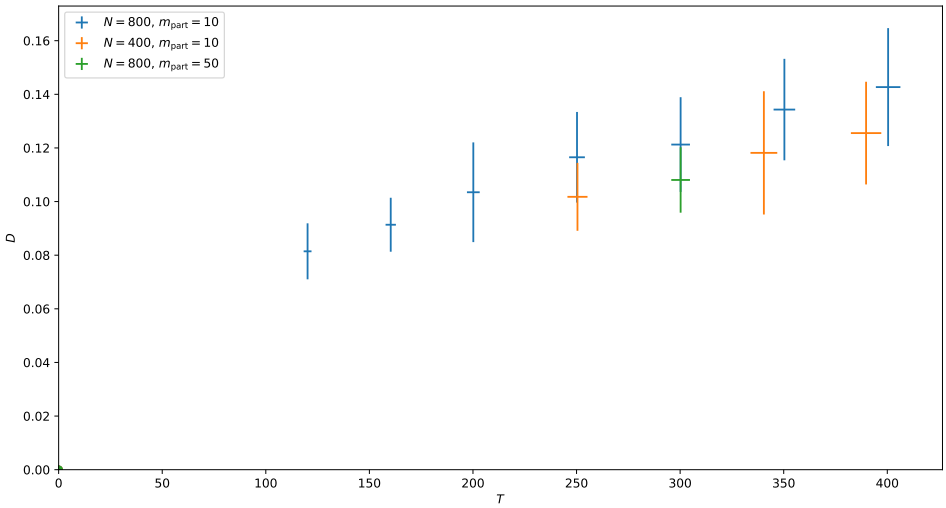


Figure 4. Coefficient de diffusion D mesuré en dynamique moléculaire pour différentes températures et différents paramètres : N, la taille du bain thermique, en nombre de particules (le rayon du conteneur est fixé de façon à ce que le fluide ait la même densité quelque soit N); et m_{part} la masse relative de la particule brownienne. L'incertitude sur D (barres d'erreurs verticales) est déterminée comme sur la figure précédente.

On remarque aussi que D dépend de la taille du bain et de la masse de la particule brownienne. C'est un effet de taille finie, principalement à cause du conteneur qui limite la diffusion (à distance) en empêchant les particules du fluide de se déplacer. Il serait préférable d'augmenter la taille du bain (coûteux en temps de calcul, déjà environ 1 heure par trajectoire sur un cœur d'un CPU puissant de 2012) et de faire une simulation en conditions périodiques aux limites, éliminant la plupart des effets de taille finie.

À priori, la non proportionnalité de D avec T s'explique par le fait que le coefficient de freinage γ (en théorie proportionnel à la viscosité) dépend lui aussi de la température. Si l'on suppose vraies les relations $D = k_{\text{B}}T/\gamma$ et $\tau = m_{\text{part}}/\gamma$, on a deux façons de déterminer γ. C'est que l'on essaie fig. 5.

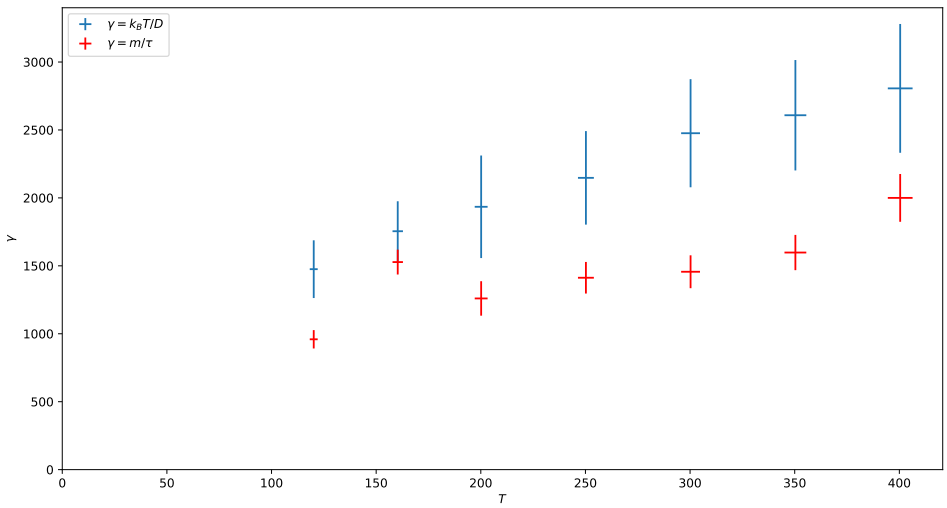


Figure 5. Coefficient de freinage γ en fonction de la température, calculé de deux façons différentes, sur le jeu de données $N = 800$, $m_{\text{part}} = 10$.

De toute évidence, cela ne fonctionne pas (même si les ordres de grandeur coïncident). On en conclue que l'équation de Langevin ne modélise pas exactement le système simulé en dynamique moléculaire. Enfin, il semble que l'incertitude sur τ soit sous-estimée, et que le nombre de trajectoires est trop faible pour avoir une force statistique suffisante.

On ne cherchera pas à comparer le coefficient de diffusion mesuré en dynamique moléculaire avec un coefficient de diffusion théorique $D = k_\mathrm{B}T/\gamma$ car le coefficient de freinage en 2D (du moins celui calculé dans le cadre de la mécanique des fluides) est considérablement plus complexe qu'en 3D, et est de plus très fortement sensible aux effets de taille finie [veysey].

Un des objectifs initiaux était de mesurer la fonction d'auto-corrélation $\langle \eta_i(t)\,\eta_j(t+\delta t)\rangle$, en particulier son intégrale pour la comparer avec la valeur théorique $2\gamma\, k_\mathrm{B}T$. Évidemment, au niveau microscopique, il n'y a pas lieu de séparer la force du bain sur la particule en freinage d'un côté et force stochastique de l'autre ($\vec{f} = -\gamma\,\vec{v} + \vec{\eta}(t)$) : ce sont les deux facettes de l'action du fluide, comme le montre la relation de fluctuation-dissipation (2). Toutefois, connaissant $\vec{v}$ et γ, on peut extraire $\vec{\eta}$ de $\vec{f}$. En particulier,

$$\begin{aligned}\langle \eta(t)\,\eta(t+\delta t)\rangle &= \langle f(t)\,f(t+\delta t)\rangle + 2\gamma\,\langle f(t)\,v(t+\delta t)\rangle + \gamma^2\,\langle v(t)\,v(t+\delta t)\rangle \\ &= \mathrm{C}_{ff}(\delta t) + 2\gamma\,\mathrm{C}_{vf}(\delta t) + \gamma^2\,\mathrm{C}_{vv}(\delta t)\end{aligned}$$

les fonctions de corrélation C_{ff} (fig. 6), C_{vf} et C_{vv} étant facilement mesurées. Malheureusement, la détermination de γ étant ambiguë, on ne s'est pas (encore) essayé à cet exercice.

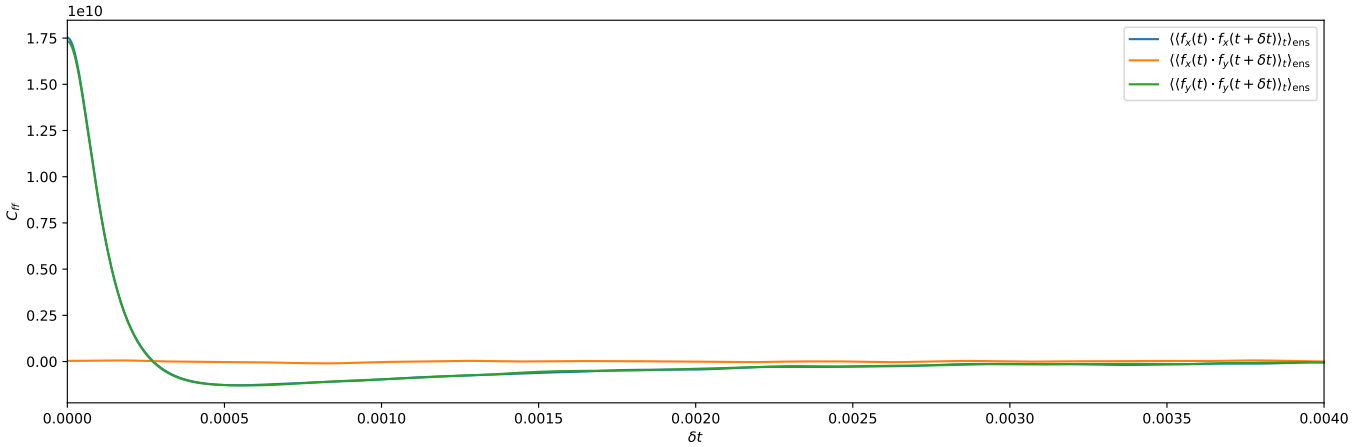


Figure 6. Fonctions de corrélation de la force $\mathrm{C}_{f_x f_x}(\delta t)$, $\mathrm{C}_{f_x f_y}(\delta t)$ et $\mathrm{C}_{f_y f_y}(\delta t)$, mesurées en faisant un moyennage temporel sur t et sur un ensemble de trajectoires (ici pour $N = 800$, $m_\mathrm{part} = 10$, $T = 350$). Les composantes x et y de la force ne sont pas corrélées, tandis que $\mathrm{C}_{f_x f_x} = \mathrm{C}_{f_y f_y}$. On peut attribuer le pic central à $\mathrm{C}_{\eta\eta}$, et la partie négative à C_{vf} et C_{vv}, qu'on ne peut soustraire de C_{ff} qu'en connaissant γ. On vérifie que $\int_0^\infty \mathrm{d}\delta t\,\mathrm{C}_{ff}(\delta t) \approx 0$.

On peut tout de même conclure que l'hypothèse de bruit blanc ($\langle \eta(t)\,\eta(t+\delta t)\rangle \propto \delta(\delta t)$) n'est valable que sur des échelles de temps grandes devant l'échelle de temps typique des collisions moléculaires (que l'on estime à 10^{-4} sur la fig. 6 dans cette simulation).

3.5.2. Simulation de l'équation de Langevin

On répète ce qui vient d'être présenté sur des trajectoires simulées avec l'équation de Langevin (cf. §3.4). Il n'y a aucune surprise ici, la théorie coïncide avec les mesures tant que le pas de temps Δt est suffisamment petit devant l'échelle de temps observée. Les résultats présentés ici sont obtenus avec $\vec{v}_0 = \vec{0}$, mais cela fonctionne aussi pour $\langle \vec{v}_0^2\rangle = \langle \vec{v}^2(t\to\infty)\rangle$, ainsi que pour des T, m_part, et γ différents.

Sur la figure 7 sont comparées les mesures avec la courbe théorique de dispersion de la position (5) ainsi qu'avec celle de la dispersion de la vitesse, $\langle \vec{v}^2(t)\rangle = \frac{2\,k_\mathrm{B}T}{m}\left(1 - \mathrm{e}^{-2\gamma t/m}\right)$.

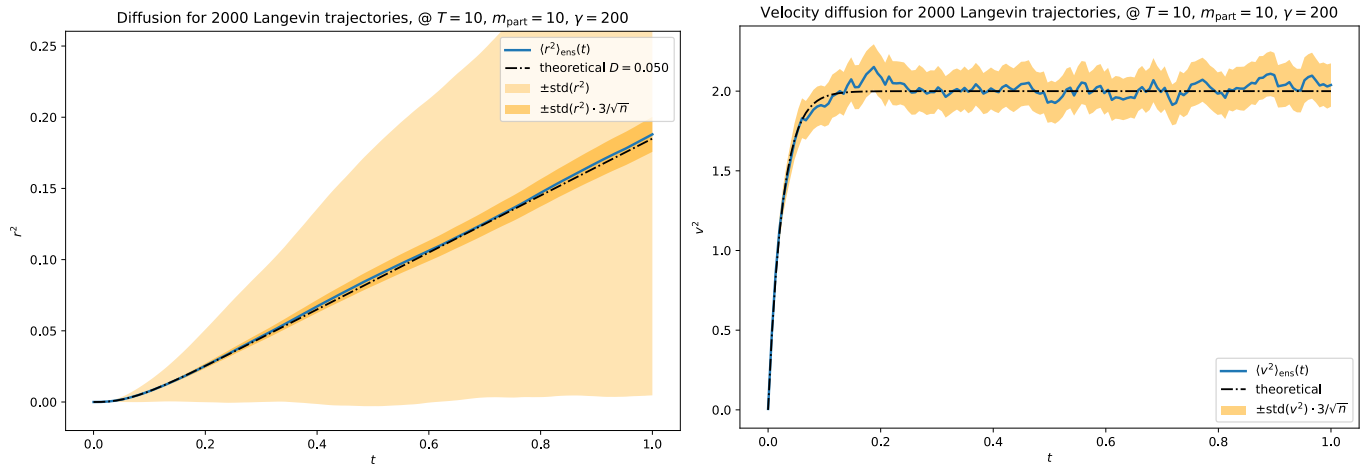


Figure 7. Dispersion de la position et de la vitesse en fonction du temps sur un ensemble de trajectoires simulées avec l'équation de Langevin.

3.6. Mouvement dans un puits de potentiel harmonique

Lorsqu'une particule est piégée dans une pince optique, on peut approximer la force subie par un potentiel harmonique de raideur k, proportionnelle à la puissance du laser (cf. section 2.1) :

$$u_{\text{ext}}(\vec{x}) = \frac{1}{2}\, k\, \vec{x}^2 \quad \Leftrightarrow \quad \vec{f}_{\text{ext}} = -k\, \vec{x} \tag{8}$$

Soumise à un tel potentiel, la particule ne diffuse plus et, à l'équilibre, sa position est distribuée selon

$$p(x) = \frac{1}{Z}\, \mathrm{e}^{-\beta u_{\text{ext}}(x)} \propto \mathrm{e}^{-\frac{k x^2/2}{k_{\mathrm{B}} T}} \quad \Leftrightarrow \quad -k_{\mathrm{B}} T \ln(p(x)/p(0)) = u_{\text{ext}}(\vec{x}) \tag{9}$$

qui n'est rien d'autre que la distribution de Boltzmann dans l'ensemble canonique (la force aléatoire jouant le rôle de bain thermique, on est dans l'ensemble canonique). Ce résultat se vérifie facilement avec l'équation de Langevin (fig. 8), moins facilement en dynamique moléculaire[6], à condition que la trajectoire soit suffisamment longue pour que tout l'espace soit exploré (plusieurs heures en pince optique).

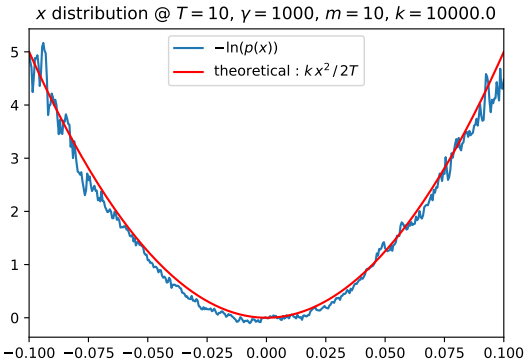


Figure 8. Distribution de la position x de la particule brownienne soumise à un potentiel harmonique de raideur k, simulée avec l'équation de Langevin, et courbe théorique.

Expérimentalement, c'est un bon moyen de calibrer le potentiel induit par la pince optique, qui n'est d'ailleurs qu'approximativement harmonique. Une autre méthode de calibration utilise la densité spectrale de puissance (PSD, pour power spectral density) du signal $x(t)$, que l'on définit par

6. Il existe un problème de température $\langle \frac{1}{2}\, k\, x_{\text{part}}^2 \rangle = \langle \frac{1}{2}\, k\, y_{\text{part}}^2 \rangle \neq \frac{1}{2}\, k_{\mathrm{B}}\, T$ que je n'ai pas encore résolu.

$$S_x(f) = |\hat{x}(f)|^2 \qquad \text{avec} \qquad \hat{x}(f) = \int \mathrm{d}t\, x(t)\, \mathrm{e}^{-2\mathrm{i}\pi f t} \tag{10}$$

la transformée de Fourier de $x(t)$. Si l'on suppose que l'équation de Langevin (1) modélise bien notre particule (ce qui est le cas [ruben]), sa transformée de Fourier donne (en 1D pour simplifier)

$$\begin{aligned} & m\,(2\mathrm{i}\pi f)^2\,\hat{x} = -k\,\hat{x} - \gamma\,(2\mathrm{i}\pi f)\,\hat{x} + \hat{\eta} \\ \Leftrightarrow\ & (-m\,4\pi^2\,f^2 + k + 2\mathrm{i}\pi\,\gamma\,f)\,\hat{x} \;=\; \hat{\eta} \end{aligned}$$

donc[7]

$$\langle S_x(f)\,\rangle = \frac{\langle|\hat{\eta}(f)|^2\rangle}{|-m\,4\pi^2\,f^2 + k + 2\mathrm{i}\pi\,\gamma\,f|^2} = \frac{2\gamma\,k_\mathrm{B}T}{(k - 4\pi^2\,m\,f^2)^2 + 4\pi^2\,\gamma^2\,f^2} \tag{11}$$

Après s'être préoccupé de la normalisation de la FFT utilisée pour le calcul de la PSD à partir de $x(t)$, cette forme théorique coïncide très bien avec la PSD mesurée (fig. 9).

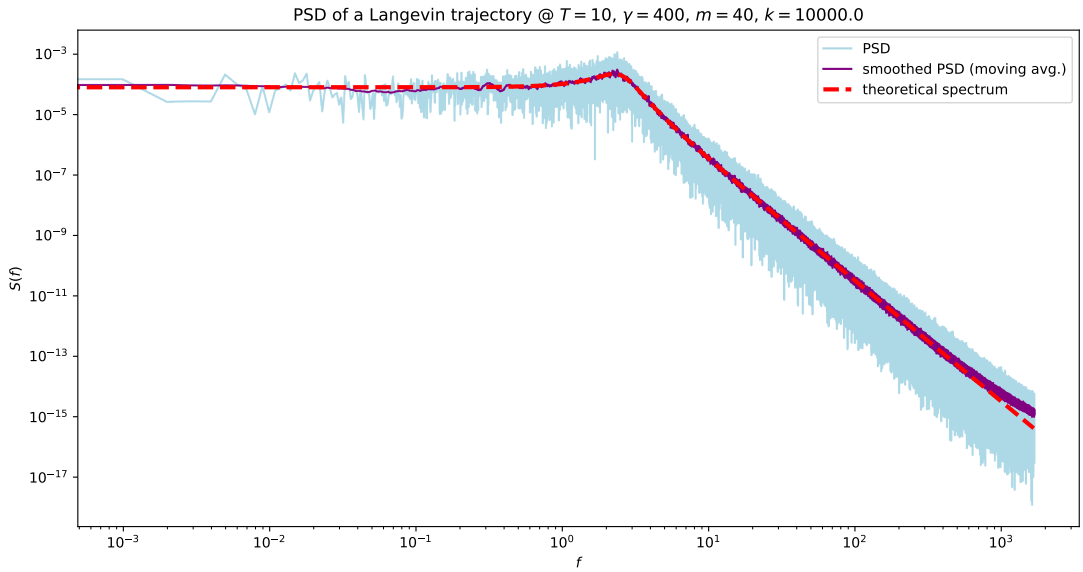


Figure 9. PSD d'une longue trajectoire d'une particule brownienne massive dans un potentiel harmonique, simulée par l'équation de Langevin (bleu clair, et lissée par moyenne glissante en fréquence en mauve), et comparaison avec la courbe théorique (11) en tirets rouges.

L'inertie d'une particule utilisée expérimentalement est négligeable, et son mouvement est alors décrit par l'équation de Langevin sur-amortie. En terme de PSD, il suffit d'effacer le terme d'inertie, et le mouvement possède alors un spectre de puissance lorentzien

$$\langle S_x(f)\rangle = \frac{k_\mathrm{B}T}{\gamma\,\pi^2}\,\frac{1}{f_c^2 + f^2} \qquad \text{avec} \qquad f_c = \frac{k}{2\pi\,\gamma} \tag{12}$$

Le pic de résonance observé fig. 9 n'est alors plus présent.

En utilisant la PSD, on peut calibrer (en plus de k) le coefficient de proportionnalité entre le signal mesuré sur le QPD (cf. section 2.2) $(X(t), Y(t))$ et la position réelle de la particule $(x(t), y(t)) = (A\cdot X(t), A\cdot Y(t))$. En effet, sous cette transformation, on a

$$S_X(f)^{-1} \;=\; A^2\cdot S_x(f)^{-1} \;=\; A^2\,\frac{\gamma\,\pi^2}{k_\mathrm{B}T}\,(f_c^2 + f^2)$$

7. $\langle|\hat{\eta}(f)|^2\rangle = \int \mathrm{d}t \int \mathrm{d}t'\,\langle\eta(t')\,\eta(t)\rangle\,\mathrm{e}^{-2\mathrm{i}\pi f t}\,\mathrm{e}^{+2\mathrm{i}\pi f t'} = \int \mathrm{d}t \int \mathrm{d}t'\,2\gamma\,k_\mathrm{B}T\delta(t-t')\,\mathrm{e}^{2\mathrm{i}\pi f\,(t'-t)} = 2\gamma\,k_\mathrm{B}T$

Il suffit alors de faire un ajustement linéaire sur $S_X^{-1} = a\,f^2 + b$ comme fonction de f^2 pour obtenir A^2 et f_c^2, γ et T étant connus. Un exemple est donné fig. 10.

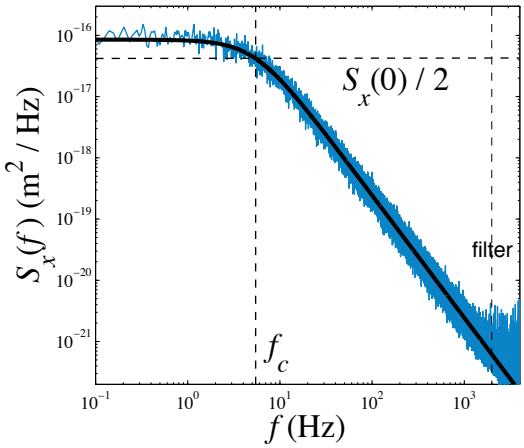


Figure 10. PSD expérimentale en pince optique, particule de silice de $1\,\mu\mathrm{m}$ dans une solution de glycérol à 60% massique, à température ambiante, après prise en compte de $A = 350\,\mathrm{nm/V}$. On mesure $f_c = 5.4\,\mathrm{Hz}$, d'où l'on tire $k = 4.8\,\mathrm{pN}/\mu\mathrm{m}$. Extrait de [ruben], fig. 1.6, p. 11.

4. Recherche d'une cible par diffusion

L'objectif de ce travail est de vérifier expérimentalement des valeurs théoriques de temps moyen d'atteinte d'une cible par une particule diffusant dans l'espace, avec réinitialisation occasionnelle (c'est-à-dire de retour à zéro). Il convient d'abord d'effectuer quelques vérifications concernant la diffusion d'une particule brownienne soumise à réinitialisation. On étudiera ensuite notre problème en 1 dimension d'espace, puis en 2 dimensions.

4.1. Diffusion sans et avec réinitialisation, temps de premier passage

On rappelle et on vérifie brièvement des résultats bien connus concernant la statistique d'une particule brownienne en 1D et de l'optimisation du temps de premier passage. [evans2011,evans2020].

La particule part de $x = 0$ à $t = 0$, et diffuse librement avec un coefficient D : $\langle x^2 \rangle = 2\,D\,t$. On fixe une cible en x_{cible} et on appelle t_{f} le temps de premier passage (*first passage time*, abrégé par "FPT") en $x = x_{\text{cible}}$. Pour chaque trajectoire, le FPT est différent, mais on peut définir un temps de premier passage moyen (*mean first passage time*, abrégé par "MFPT") $\langle t_{\text{f}} \rangle$. Le but est alors de **minimiser ce MFPT**, et en particulier de voir l'effet qu'a une réinitialisation de la position en $x = 0$, dont on précisera le protocole plus tard.

4.1.1. Sans réinitialisation

Notons $\mathbb{p}_0(x,t)$ la distribution de probabilité de présence de la particule en x et au temps t, sans réinitialisation à la position initiale. Elle suit une simple équation de diffusion

$$\partial_t\, \mathbb{p}_0 = D\,\partial_x^2\, \mathbb{p}_0 \quad \text{avec} \quad \mathbb{p}_0(x, t=0) = \delta(x) \tag{13}$$

(c'est l'*équation maîtresse*) et c'est une simple gaussienne s'élargissant avec le temps [evans2020,(2.9)] :

$$\mathbb{p}_0(x,t) = \frac{1}{\sqrt{4\pi\,D\,t}}\,\mathrm{e}^{-\frac{x^2}{4Dt}} \tag{14}$$

Nommons $p_{\text{att}}(t)$ la probabilité d'atteindre la cible à un temps t, c'est-à-dire la distribution de t_{f}. On

montre[8] que sa transformée de Laplace temporelle, $\widehat{p_{\text{att}}}(s) := \int_0^\infty \mathrm{d}t\, \mathrm{e}^{-st}\, p_{\text{att}}(t)$, vaut

$$\widehat{p_{\text{att},0}}(s) = \mathrm{e}^{-\sqrt{s/D}\,L} \quad \text{avec} \quad L = |x_{\text{cible}}| \tag{15}$$

Il est plus simple de travailler avec la *probabilité de survie* de la particule (c'est-à-dire la probabilité que la cible n'ait pas été atteinte au temps t) $p_{\text{surv}}(t) = 1 - \int_0^t \mathrm{d}t_{\text{f}}\, p_{\text{att}}(t_{\text{f}}) \;\Leftrightarrow\; \widehat{p_{\text{surv}}} = \frac{1}{s} - \frac{1}{s}\widehat{p_{\text{att}}}$.

On a alors $\widehat{p_{\text{surv},0}}(s) = \frac{1}{s}\left(1 - \mathrm{e}^{-\sqrt{s/D}\,L}\right)$. Les tables de transformées de Laplace donnent finalement

$$p_{\text{surv},0}(t) = \mathrm{erf}\left(\frac{L}{\sqrt{4Dt}}\right) \quad \overset{\partial_t}{\Longleftrightarrow} \quad p_{\text{att},0}(t) = \frac{L}{\sqrt{4\pi D}}\, t^{-3/2}\, \mathrm{e}^{-\frac{L^2}{4Dt}} \tag{16}$$

On vérifie ce résultat avec une simulation grâce à l'équation de Langevin dans le régime sur-amorti (l'inertie de la particule n'étant pas prise en compte dans ces calculs).

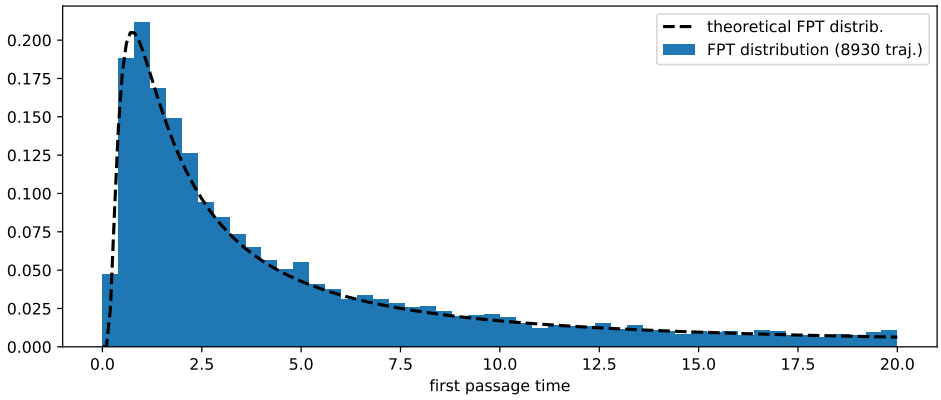


Figure 11. Comparaison de la distribution du temps de premier passage p_{att} entre la théorie et une simulation de l'équation de Langevin. On observe bien la décroissance polynomiale ($t^{-3/2}$) de la queue, qui implique $\langle t_{\text{f}} \rangle = \infty$.

Le temps moyen d'atteinte de la cible, le MFPT, est simplement l'espérance sur $p_{\text{att}}(t)$:

$$\langle t_{\text{f}} \rangle_0 = \int_0^\infty t\, p_{\text{att},0}(t)\, \mathrm{d}t \propto \int_0^\infty t \cdot t^{-3/2}\, \mathrm{e}^{-\frac{L^2}{4Dt}}\, \mathrm{d}t \sim \int^\infty \frac{\mathrm{d}t}{\sqrt{t}} = \infty \tag{17}$$

Autrement dit, un marcheur aléatoire simple est un très mauvais chercheur : il arrive beaucoup trop souvent qu'il atteigne la cible après un temps long.

8. Par définition de $\mathbb{p} = \mathbb{p}_0$, la probabilité d'*être* à la cible à t, c'est la somme des probabilités $p_{\text{att}}(t_1)$ d'*atteindre* la cible en t_1, multiplié par la probabilité $\mathbb{p}(\Delta x = 0, \Delta t) = 1/\sqrt{4\pi\, D\, \Delta t}$ de *rester* sur la cible pendant $\Delta t = t - t_1$, d'où

$$\mathbb{p}(x_{\text{cible}}, t) = \int_0^t \mathrm{d}t_1\, p_{\text{att}}(t_1)\, \mathbb{p}(\Delta x = 0, t - t_1)$$

Prenons la transformée de Laplace temporelle de cette dernière équation :

$$\hat{\mathbb{p}}(x_{\text{cible}}, s) := \int_0^\infty \mathrm{d}t\, \mathrm{e}^{-st}\, \mathbb{p}(x_{\text{cible}}, t) = \int_0^\infty \mathrm{d}t\, \mathrm{e}^{-st} \int_0^t \mathrm{d}t_{\text{f}}\, p_{\text{att}}(t_{\text{f}})\, \mathbb{p}(0, t - t_{\text{f}}) = \widehat{p_{\text{att}}}(s) \cdot \hat{\mathbb{p}}(0, s)$$

Ainsi,

$$\widehat{p_{\text{att}}}(s) = \frac{\hat{\mathbb{p}}(x_{\text{cible}}, s)}{\hat{\mathbb{p}}(0, s)} = \frac{\frac{1}{2\sqrt{D\,s}} \exp\left(-\sqrt{s/D}\, |x_{\text{cible}}|\right)}{1/2\sqrt{D\,s}} = \mathrm{e}^{-\sqrt{s/D}\,L} \quad \text{avec} \quad L = |x_{\text{cible}}|$$

4.1.2. Avec réinitialisation poissonienne

Regardons l'effet qu'à une réinitialisation de la position à l'origine selon un processus de Poisson de taux α (c'est-à-dire que le temps τ séparant deux réinitialisations suit une distribution de Poisson $\mathrm{e}^{-\alpha\tau}$). Un exemple de trajectoire est donné figure 12.

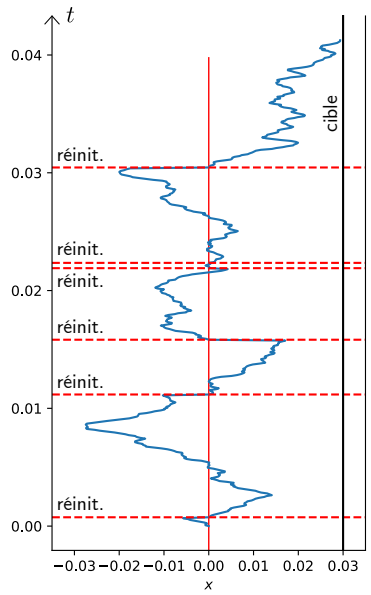


Figure 12. Trajectoire avec réinitialisation.

L'équation maîtresse pour la distribution de probabilité $\mathbb{p}_{\mathsf{r}}(x,t)$ de présence de la particule en x et au temps t devient

$$\partial_t\, \mathbb{p}_{\mathsf{r}}(x) = D\,\partial_x^2\, \mathbb{p}_{\mathsf{r}}(x) - \alpha\, \mathbb{p}_{\mathsf{r}}(x) + \alpha\,\delta(x) \quad \text{avec} \quad \mathbb{p}_{\mathsf{r}}(x,t=0) = \delta(x)$$

Le terme diffusif de (13) est toujours là, et on a rajouté deux terme proportionnels au taux α : la réinitialisation soustrait la particule d'où elle est ($\to$ perte de probabilité $-\alpha\,\mathbb{p}_{\mathsf{r}}(x)$) et la replace en $x=0$ ($\to$ gain de probabilité $+\alpha\,\delta(x)$). La solution de cette équation possède une limite finie stationnaire (contrairement à (14)) :

$$\mathbb{p}_{\mathsf{r}}(x,t) \xrightarrow[t\to\infty]{} \frac{\kappa}{2}\,\mathrm{e}^{-\kappa|x|} \quad \text{avec} \quad \kappa = \sqrt{\frac{\alpha}{D}}$$

C'est un exemple simple de **distribution stationnaire hors-équilibre**.

Une propriété générale des processus de réinitialisation poissonienne est l'expression de la transformée de Laplace de la probabilité de survie $p_{\mathsf{surv},\mathsf{r}}(t;x_{\mathsf{cible}})$ en fonction de celle sans réinitialisation $p_{\mathsf{surv},0}(t;x_{\mathsf{cible}})$:

$$\widehat{p_{\mathsf{surv},\mathsf{r}}}(s) = \frac{\widehat{p_{\mathsf{surv},0}}(\alpha+s)}{1-\alpha\,\widehat{p_{\mathsf{surv},0}}(\alpha+s)} \tag{18}$$

(qui n'est pas spécifique à la diffusion) [evans2020,(3.4)]. En injectant l'expression (16), on obtient

$$\widehat{p_{\mathsf{surv},\mathsf{r}}}(s) = \frac{1-\mathrm{e}^{-\kappa(s)L}}{s+\alpha\,\mathrm{e}^{-\kappa(s)L}} \quad \text{avec} \quad \kappa(s) = \sqrt{\frac{\alpha+s}{D}} \quad \text{et} \quad L = |x_{\mathsf{cible}}| \tag{19}$$

L'inversion de Laplace analytique n'est pas simple. On la calcule alors numériquement, et on la compare avec une simulation avec l'équation de Langevin (fig. 13). Le comportement en $1/s$ implique une décroissance exponentielle $p_{\mathsf{surv},\mathsf{r}}(t)$, garantissant l'existence de $\langle t_{\mathsf{f}}\rangle$.

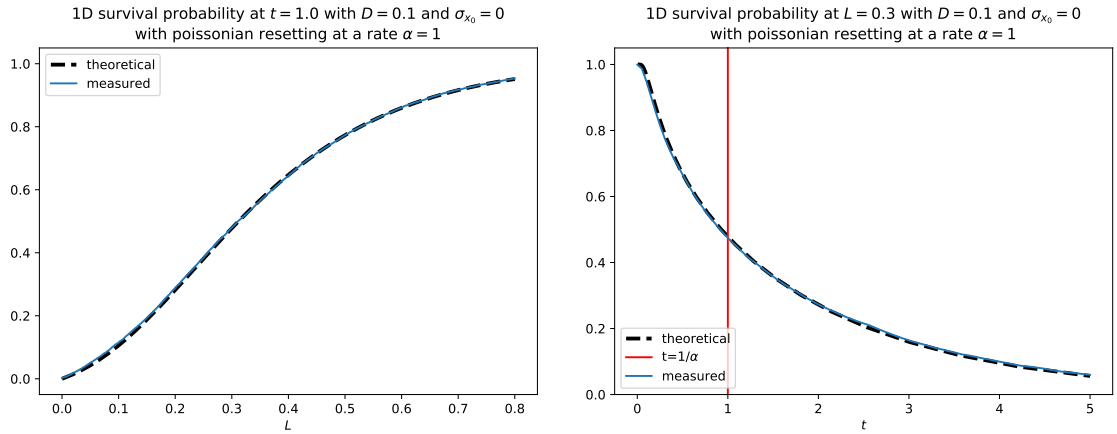


Figure 13. Vérification de $p_{\mathsf{surv},\mathsf{r}}$ avec l'équation de Langevin. À gauche, coupe à $t=\mathrm{cste}$. Plus la cible est éloignée, plus la survie est probable au temps t. À droite, coupe à $x_{\mathsf{cible}}=\mathrm{cste}$. Plus on attend, moins la survie est probable. On devine bien la décroissance exponentielle de $p_{\mathsf{surv},\mathsf{r}}(t)$, donc de $p_{\mathsf{att},\mathsf{r}}(t)$.

Calculons ce MFPT : puisque $p_{\mathsf{att}}(t) = -\frac{\partial}{\partial t}\, p_{\mathsf{surv}}(t)$, une intégration par partie donne

$$\langle t_{\mathsf{f}}\rangle = \int_0^\infty t\, p_{\mathsf{att}}(t)\,\mathrm{d}t = \underbrace{\big[-t\, p_{\mathsf{surv}}(t)\big]_0^\infty}_{=0} + \int_0^\infty p_{\mathsf{surv}}(t)\,\mathrm{d}t$$

Or c'est précisément la transformée de Laplace $p_{\text{surv}}(s) = \int_0^\infty \mathrm{e}^{-st}\, p_{\text{surv}}(t)\,\mathrm{d}t$ de p_{surv} évaluée en $s = 0$. Il suffit donc de prendre $s = 0$ dans (19) :

$$\langle t_{\mathsf{f}} \rangle = \frac{1 - \mathrm{e}^{-\kappa(0)L}}{\alpha\, \mathrm{e}^{-\kappa(0)L}} = \frac{1}{\alpha}\left(\mathrm{e}^{\sqrt{\alpha/D}\,L} - 1\right) \quad \Longrightarrow \quad \boxed{\tau_{\mathsf{f}} = \frac{4}{c^2}\left(\mathrm{e}^c - 1\right)} \tag{20}$$

après avoir introduit les grandeurs sans dimension

$$c = L\sqrt{\frac{\alpha}{D}} \quad \text{et} \quad \tau_{\mathsf{f}} = \frac{4D\langle t_{\mathsf{f}} \rangle}{L^2} \tag{21}$$

Dans la limite $\alpha \to 0$ (pas de réinitialisation), on retrouve $\langle t_{\mathsf{f}} \rangle = \infty$. Le temps moyen d'atteinte de la cible *n'est pas monotone* en α, comme le montre la simulation (fig. 14a) : il existe un taux de réinitialisation optimal α^* (correspondant à $c^* = 1.59362\ldots$, fig. 14b). Quelle en est la raison physique ?

- Si α est trop petit, le chercheur ne revient presque jamais au point de départ, et perd son temps à explorer des chemins qui s'éloignent beaucoup de sa position initiale
- Si α est trop grand, le chercheur revient à son point de départ sans cesse, avant que la diffusion lui permette d'atteindre sa cible avec une probabilité suffisante

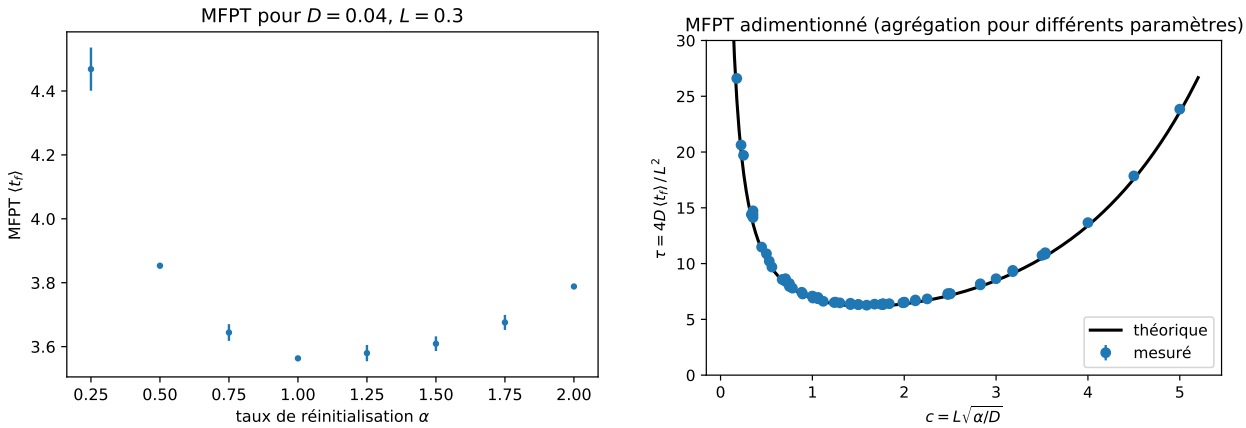


Figure 14. À droite, mesures du temps moyen d'atteinte de la cible en $x_{\text{cible}} = L$ en fonction du taux α, obtenues avec l'équation de Langevin. Barre d'erreur = écart-type/$\sqrt{\text{réalisations}}$. À gauche, temps agrégation de nombreuses simulations (α entre 0.1 et 2, D entre 0.02 et 0.04, L entre 0.05 et 0.5) en terme de c et de τ_{f} : une fois adimensionné, tous les points se retrouvent sur la même courbe.

Mentionnons l'effet du pas de temps (ou, de façon équivalente pour l'expérience, l'effet de la fréquence d'acquisition finie) sur le désaccord avec la théorie. Un pas de temps Δt important a tendance à faire disparaître les temps de premier passage $t_{\mathsf{f}} \lesssim \Delta t$, ce qui sur-estime le MFPT $\langle t_{\mathsf{f}} \rangle$. En effet, on observe une convergence vers la courbe théorique lorsque Δt est diminué, comme l'illustre la figure 15.

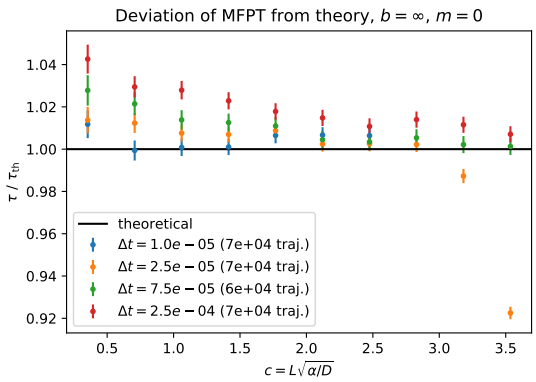


Figure 15. Déviation des points calculés par simulation par rapport à la théorie (ligne noire) pour différents pas de temps Δt. On observe une forte sous-estimation pour les grands c (où τ_{f} est très grand) lorsque Δt est trop grand.

4.1.3. Avec réinitialisation périodique

Un autre protocole de réinitialisation, qui est utilisé dans les réalisations expérimentales de S. Ciliberto, est la réinitialisation périodique. La particule est ramenée à l'origine de façon régulière, avec période T_r. Le temps de premier passage moyen s'exprime à partir de la probabilité de survie sans réinitialisation :

$$\langle t_\mathsf{f} \rangle = \frac{\int_0^T \mathrm{d}t\, p_{\mathsf{surv},0}(t)}{1 - p_{\mathsf{surv},0}(T_\mathsf{r})} \tag{22}$$

Pour la diffusion 1D (16), le MFPT adimensionné $\tau_\mathsf{f} = 4D\langle t_\mathsf{f}\rangle / L^2$ vaut alors [publi,(23)]

$$\tau_\mathsf{f}(c) = \frac{\mathrm{erf}(c) + 2\,c\left(\mathrm{e}^{-c^2}\sqrt{\pi} - c\,\mathrm{erfc}(c)\right)}{c^2\,\mathrm{erfc}(c)} \tag{23}$$

où le taux de réinitialisation adimensionné devient $c = L/\sqrt{4\,D\,T_\mathsf{r}}$. On utilisera cette expression comme une limite asymptotique dans la discussion suivante.

4.2. Temps de premier passage pour une cible 1D à variance finie

Afin de vérifier expérimentalement ces résultats, on utilise une particule brownienne diffusant dans de l'eau. Pour réinitialiser la position de la particule à l'origine, on utilise une pince optique. Il y a toutefois une différence de taille avec les résultats établis précédemment : la particule ne peut pas être déplacée exactement à l'origine $x = 0$ car la puissance du laser n'est pas infinie. Comme vu en section 3.6, la distribution de la position d'une particule dans une pince optique (et donc la position initiale x_0 à chaque réinitialisation) est approximativement gaussienne, de variance $\sigma^2 = k_\mathrm{B}T/k$:

$$p(x_0) \propto \mathrm{e}^{-kx_0^2/2k_\mathrm{B}T} = \mathrm{e}^{-x_0^2/2\sigma^2}$$

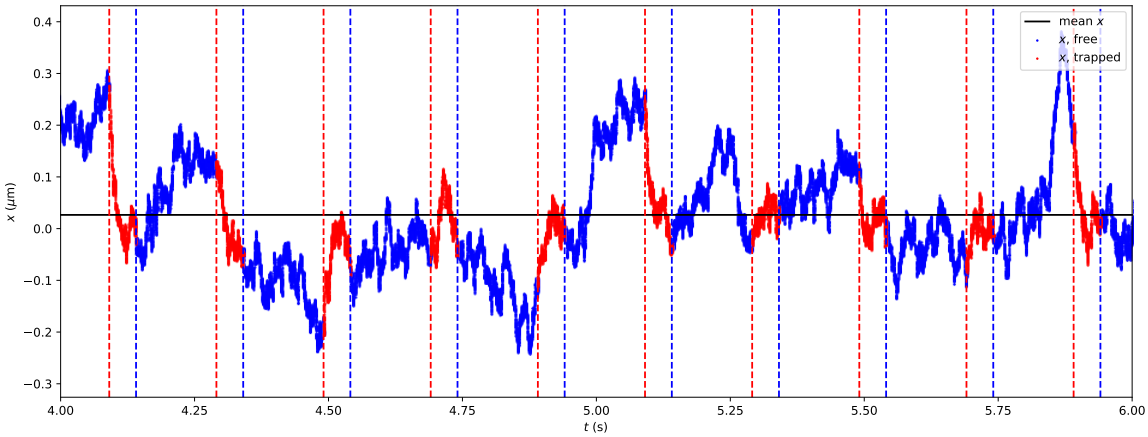


Figure 16. Exemple de trajectoire expérimentale avec réinitialisation périodique. Les zones bleues représentent la période de diffusion libre (ici $T = 150\,\mathrm{ms}$) et les zones rouges représentent la période de réinitialisation, sous pince optique, au terme de laquelle la distribution de la position s'est relaxée vers $p(x_0)$.

Sans réinitialisation, la probabilité de survie est alors une simple convolution avec $p(x_0)$:

$$p_{\mathsf{surv},0,\sigma}(t; x_\mathsf{cible}) = \int \mathrm{d}x_0\, p(x_0)\, p_{\mathsf{surv},0}(t; x_\mathsf{cible} - x_0) \tag{24}$$

La forme théorique du temps de premier passage moyen adimensionné $\tau_\mathsf{f} = 4D\langle t_\mathsf{f}\rangle / L^2$, prenant en compte la distribution gaussienne de la position de réinitialisation, est (en injectant (24) dans (22))

$$\tau_{\mathsf{f,per}}(b, c) = \frac{\int_0^1 \mathrm{d}v \int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}u\, \mathrm{e}^{-u^2/2}\, \mathrm{erf}\left(c\left|1 - \frac{u}{b}\right| / \sqrt{v}\right)}{\int_{-\infty}^{+\infty} \mathrm{d}u\, \mathrm{e}^{-u^2/2}\, \mathrm{erfc}\left(c\left|1 - \frac{u}{b}\right|\right)} \tag{25}$$

pour une réinitialisation périodique [publi,(22)], et (en injectant (24) dans (18) puis en prenant $s=0$)

$$\tau_{\mathsf{f,pois}}(b,c) = \frac{4}{c^2}\left(\frac{2\,\mathrm{e}^{-c^2/2b^2}}{\mathrm{e}^c\,\mathrm{erfc}\Big(\frac{1}{\sqrt{2}}\big(\frac{c}{b}+b\big)\Big)+\mathrm{e}^{-c}\,\mathrm{erfc}\Big(\frac{1}{\sqrt{2}}\big(\frac{c}{b}-b\big)\Big)}-1\right) \tag{26}$$

pour une réinitialisation poissonienne [publi,(40)], où l'on a introduit un nouveau paramètre adimensionné $b=L/\sigma$, en plus du paramètre $c=L/\sqrt{4\,D\,T_{\mathsf{r}}}$ et $c=L\sqrt{\alpha/D}$ respectivement. Dans la limite $b\to\infty \Leftrightarrow \sigma\to 0$ où la réinitialisation est exactement à l'origine, on retrouve les expressions (20) et (23) respectivement.

On se propose de retrouver ces résultats avec des simulations grâce à l'équation de Langevin. En effet, il est important d'étudier le cas 1D pour apprendre de ses erreurs (déjà nombreuses et subtiles), avant de s'attaquer au cas 2D, plus complexe pour la simulation comme pour la théorie. Le but étant de pousser les simulations dans les cas extrêmes ($b\ll 1$, $b\gg 1$, $c\gg 1$, grande variété de paramètres dimensionnés α, T_{r}, L, et D...) pour s'assurer de l'absence de problèmes peu visibles, dans la limite des ressources en calcul. Le code est disponible à l'adresse `https://github.com/xif-fr/BrownianMotion/blob/master/langevin-survival.cpp` et `https://github.com/xif-fr/BrownianMotion/blob/master/langevin-mfpt/langevin-ft-automated.ipynb`.

Les résultats finaux sont donnés en figure 17. L'accord est très bon (écart à la théorie inférieur à 5%, et pour la majorité des points inférieur à 2%) et des points de L, α ou T_{r} très différents coïncident entre eux après adimensionnement. L'accord entre la simulation et la théorie n'a pas été aussi bon du premier coup, et il a fallu éliminer quelques erreurs difficiles à détecter dans le code.

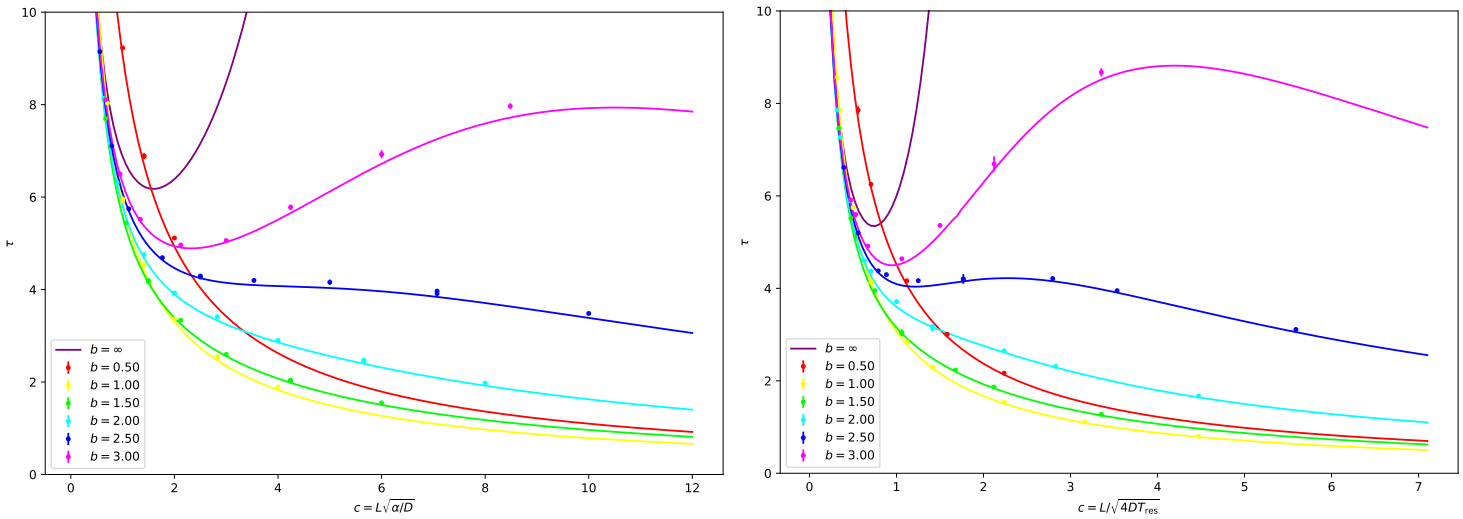


Figure 17. MFPT adimensionné en fonction de c pour différentes valeurs de b. Les lignes sont les courbes théoriques, et les points proviennent de simulations. À gauche, réinitialisation poissonienne. À droite, réinitialisation périodique. Les barres d'erreurs valent : écart-type(MFPT)$/\sqrt{\text{réalisations}}$.

Que ça soit pour le protocole de réinitialisation périodique ou poissonien, on observe un fait intéressant : au dessus d'une certaine valeur de b (donc pour une réinitialisation suffisamment resserrée autour de l'origine, en l'occurrence au dessus de $b_{\mathsf{crit}}\simeq 2.5388$ pour le protocole poissonien et $b_{\mathsf{crit}}\simeq 2.3978$ pour le protocole périodique), il existe un minimum local du temps moyen de premier passage $\tau_{\mathsf{f}}(b,c)$ en $c_{*,\mathsf{min}}(b)$ suivi d'un maximum local en $c_{*,\mathsf{max}}(b)$, avec enfin une décroissance vers zéro pour $c\to\infty$ (sauf à la limite $b=\infty$). Pour $b<b_{\mathsf{crit}}$, la courbe $\tau_{\mathsf{f}}(c)$ est monotone décroissante.

Physiquement, cette décroissance s'explique par le fait que lorsque $\sigma\neq 0$, la particule peut tomber proche de la cible à chaque réinitialisation, ce qui se produit d'autant plus souvent que c est grand. Si l'on prenait en compte le temps de réinitialisation nécessairement fini, il n'y aurait pas une telle décroissance de $\langle t_{\mathsf{f}}\rangle$ vers zéro. L'autre limite, $c\to 0$, correspond au cas sans réinitialisation, pour lequel $\langle t_{\mathsf{f}}\rangle=\infty$ (cf. eq. 17).

4.3. Temps de premier passage pour une cible 2D à variance finie

On étudie maintenant notre problème de premier passage en deux dimensions d'espace. On place à une distance L une cible circulaire de rayon R_{tol} (*rayon de tolérance*), comme sur la figure 18. On dit que la cible est atteinte dès que la particule touche la frontière. Les paramètres adimensionné b et c sont définis comme dans le cas 1D, et on introduit naturellement un troisième paramètre : $a = R_{\text{tol}}/L$. On se limite à $a < 1$.

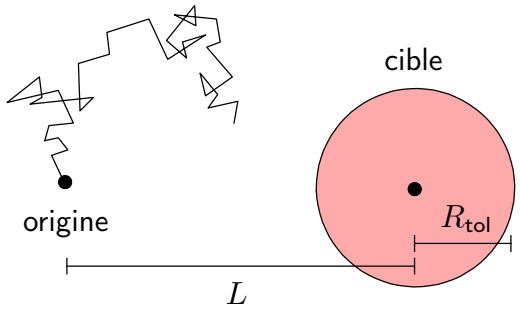


Figure 18. Définition de la cible circulaire du problème 2D.

Les expressions théoriques (27), (28), (30), (31), (32), (33) ont été calculées par S. N. Majumdar dans des notes qui n'ont pas encore fait l'objet de publication, on les a donc reproduit ici.

4.3.1. Probabilité de survie sans réinitialisation

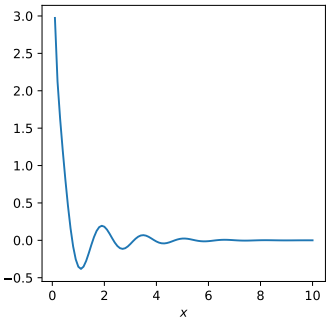
De façon similaire au cas 1D (cf. eq. 15), il convient d'abord d'établir la transformée de Laplace de la probabilité de survie $p^{\text{2D}}_{\text{surv},0}(t)$:

$$\widehat{p^{\text{2D}}_{\text{surv},0}}(s) = \frac{1}{s}\left(1 - \frac{\mathrm{K}_0\left(\sqrt{s/D}\,L\right)}{\mathrm{K}_0\left(\sqrt{s/D}\,R_{\text{tol}}\right)}\right) \tag{27}$$

où K_ν sont les fonctions de Bessel modifiées de deuxième espèce. Par chance, elle s'inverse encore analytiquement [barzykin], où J_ν et Y_ν sont les fonctions de Bessel de première et de deuxième espèce :

$$p^{\text{2D}}_{\text{surv},0}(t) = \frac{2}{\pi}\int_0^\infty \mathrm{d}x\,\frac{1}{x}\,\mathrm{e}^{-\frac{Dtx^2}{R_{\text{tol}}^2}}\,\frac{\mathrm{Y}_0(x/a)\,\mathrm{J}_0(x) - \mathrm{Y}_0(x)\,\mathrm{J}_0(x/a)}{\mathrm{J}_0(x)^2 + \mathrm{Y}_0(x)^2} \tag{28}$$

On se propose de comparer cette probabilité de survie avec des simulations de l'équation de Langevin.



Problème : l'intégrale (28) est difficile à intégrer numériquement : la plupart des logiciels de calcul scientifique (Mathematica, MATLAB, SciPy…) ne sont pas en mesure de l'intégrer numériquement de façon précise directement. Il est donc nécessaire d'analyser le comportement de l'intégrande, dont on trouve un exemple à droite, pour comprendre pourquoi.
D'une part, l'intégrande est oscillante, quoique l'exponentielle atténue rapidement les oscillations. D'autre part, l'intégrande diverge fortement en 0. Enfin, il faut intégrer sur $[0, \infty]$. Cette combinaison de facteurs fait échouer la plupart des intégrateurs qui, souvent, sélectionnent un algorithme adapté à seulement un ou deux de ces problèmes. La première idée est de séparer le domaine d'intégration en deux : $[0, x_1]$ et $[x_1, \infty]$. Cela améliore en effet la situation, et c'est suffisant pour (28); c'est toutefois insuffisant pour les intégrales des sections suivantes.

La solution adoptée est de régulariser l'intégrale en y extrayant la divergence. Matematica donne le développement suivant en 0 :

$$f_1(x) = \frac{\mathrm{Y}_0(x/a)\,\mathrm{J}_0(x) - \mathrm{Y}_0(x)\,\mathrm{J}_0(x/a)}{\mathrm{J}_0(x)^2 + \mathrm{Y}_0(x)^2}\,\frac{1}{x}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{cste}\cdot x^2} \underset{x\to 0}{\simeq} \frac{2}{\pi}\ln\!\left(\frac{1}{a}\right)\frac{1}{x}\,\frac{1}{1+\frac{4}{\pi^2}\left(\gamma+\ln\frac{x}{2}\right)^2} =: f_2(x)$$

Par chance, f_2 s'intègre analytiquement. On peut alors ré-écrire

$$p^{\mathsf{2D}}_{\mathsf{surv},0} = \frac{2}{\pi}\int_0^\infty \mathrm{d}x\, f_1(x) = \frac{2}{\pi}\int_0^\infty \mathrm{d}x\,\left(f_1(x) - f_2(x)\right) + 2\ln\!\left(\frac{1}{a}\right)$$

où $\int_0^\infty \mathrm{d}x\,\left(f_1(x) - f_2(x)\right)$ s'intègre numériquement bien plus facilement.

Pour l'évaluation de (28), c'est suffisant (cf. fig. 19). Mais c'est encore insuffisant pour les intégrales des sections suivantes, car maintenant l'intégrande $f_1 - f_2$ converge lentement en $x \to \infty$, empêchant l'intégrateur d'atteindre une bonne précision. Heureusement, f_1 décroît exponentiellement et $\int_0^{x_c}\mathrm{d}x\, f_2(x)$ est encore analytique pour $x_c \neq \infty$, on peut donc couper l'intégrale en x_c :

$$\begin{aligned} p^{\mathsf{2D}}_{\mathsf{surv},0} = \frac{2}{\pi}\int_0^\infty \mathrm{d}x\, f_1(x) &\approx \frac{2}{\pi}\int_0^{x_c} \mathrm{d}x\, f_1(x) \\ &= \frac{2}{\pi}\int_0^{x_c} \mathrm{d}x\,\left(f_1(x) - f_2(x)\right) + \frac{2}{\pi}\int_0^{x_c} \mathrm{d}x\, f_2(x) \\ &= \frac{2}{\pi}\int_0^{x_c} \mathrm{d}x\,\left(f_1(x) - f_2(x)\right) + \ln\!\left(\frac{1}{a}\right)\left(1 + \frac{2}{\pi}\arctan\!\left(\frac{2}{\pi}\left(\gamma + \ln\frac{x_c}{2}\right)\right)\right) \end{aligned}$$

L'intégrateur de SciPy, `scipy.integrate.quad`, fonctionne alors très bien avec l'intégrale restante

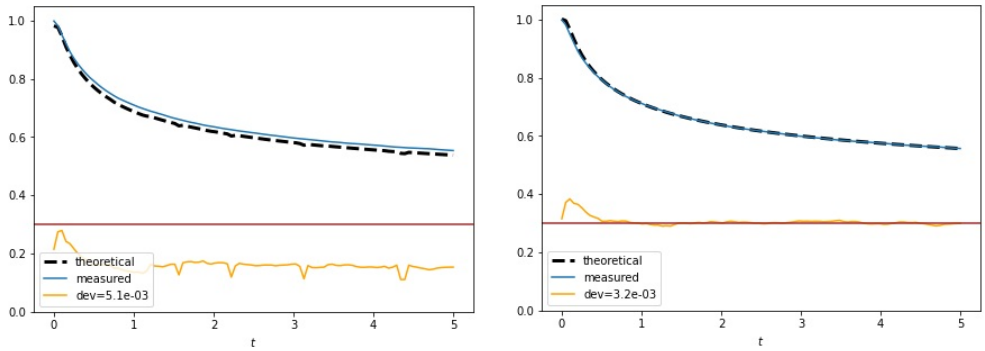


Figure 19. Exemple de probabilité de survie à une cible 2D, en fonction du temps à $L = 0.3$ fixé ($D = 0.1$, $R_{\mathsf{tol}} = 0.05$). Cette fois, ce sont les simulations (avec l'équation de Langevin) qui ont servi à vérifier la courbe théorique et non l'inverse. À gauche, la courbe théorique est calculée sans régularisation : il y a une déviation importante avec la simulation, comme le montre la courbe orange (zoom sur la déviation relative, ligne rouge = déviation nulle). À droite, la courbe théorique est calculée avec régularisation et coïncide beaucoup mieux avec la simulation.

4.3.2. Réinitialisation poissonienne

Comme pour le cas 1D, on utilise la relation générale (18) sur $\widehat{p^{\mathsf{2D}}_{\mathsf{surv},0}}(s)$ (27) pour obtenir le temps moyen de premier passage dans le protocole de réinitialisation poissonienne à $\sigma = 0 \Leftrightarrow b = \infty$:

$$\tau_{\mathsf{f}}(c, a) = \frac{4}{c^2}\left(\frac{\mathrm{K}_0(c\,a)}{\mathrm{K}_0(c)} - 1\right) \tag{29}$$

L'accord entre la simulation et la théorie est très bon ($<3\%$ de déviation avec la théorie, cf. fig. 20).

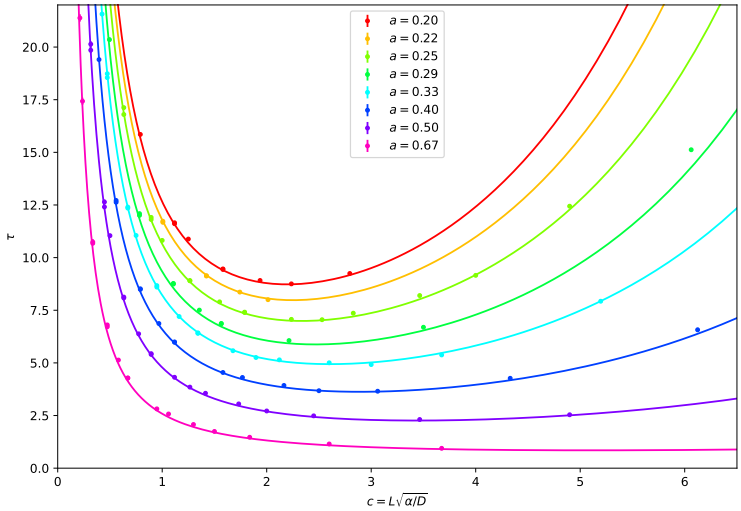


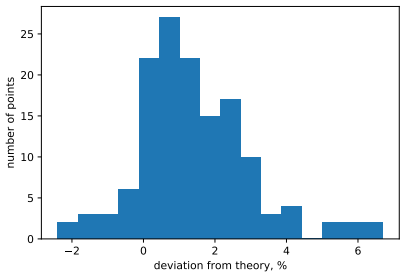
Figure 20. MFPT adimensionné mesuré par simulation de l'équation de Langevin (points), comparé à la théorie $\tau_{\mathsf{f}}(c,a)$ dans la limite $\sigma=0$, représenté comme fonction de c et pour différentes valeurs du paramètre a (lignes).

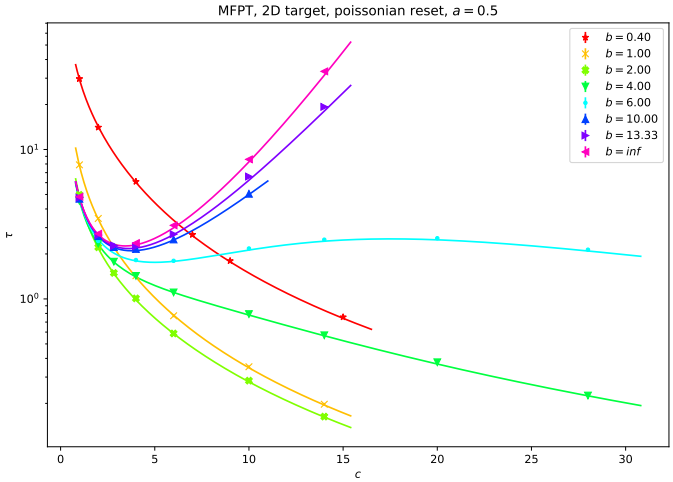
Encore une fois, il existe à a fixé un temps de premier passage optimal, atteint pour le taux de réinitialisation adimensionné $c_*(a)$ que l'on calcule numériquement.

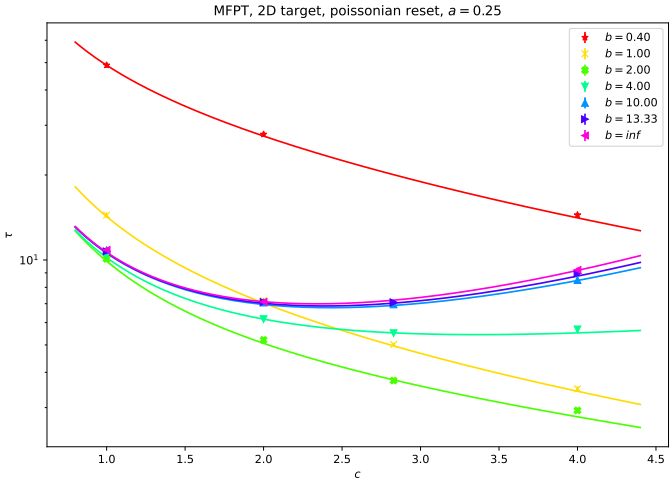
Si la position de réinitialisation est distribué selon une gaussienne de variance σ^2 ($p(\vec{x}_0) \propto \mathrm{e}^{-\vec{x}_0{}^2/2\sigma^2}$), le MFPT adimensionné vaut alors (en injectant (27) dans (24) pour obtenir $\widetilde{p^{\mathsf{2D}}_{\mathsf{surv},0,\sigma}}(s)$, puis en utilisant (18))

$$\tau_{\mathsf{f}}(b,c,a) = \frac{4}{c^2}\left(\frac{1}{1+\mathrm{e}^{-b^2/2}\int_{ab}^{\infty}\mathrm{d}z\,z\,\mathrm{e}^{-z^2/2}\left(\frac{\mathrm{K}_0(c\,z\,/\,b)}{\mathrm{K}_0(a\,c)}-1\right)\mathrm{I}_0(b\,z)}-1\right) \tag{30}$$

où I_ν sont les fonctions de Bessel modifiées de première espèce. L'intégrale ne pose aucune difficulté numérique, et l'accord avec les simulations est très bon (fig. 21 et histogramme des déviations à droite). À noter que la comparaison avec les simulations à très petit b a révélé successivement deux erreurs dans le calcul théorique. On remarque encore l'existence d'une valeur de b critique au dessus de laquelle $\tau_{\mathsf{f}}(c)$ présente un minimum local, et en dessous de laquelle $\tau_{\mathsf{f}}(c)$ est monotone décroissant.







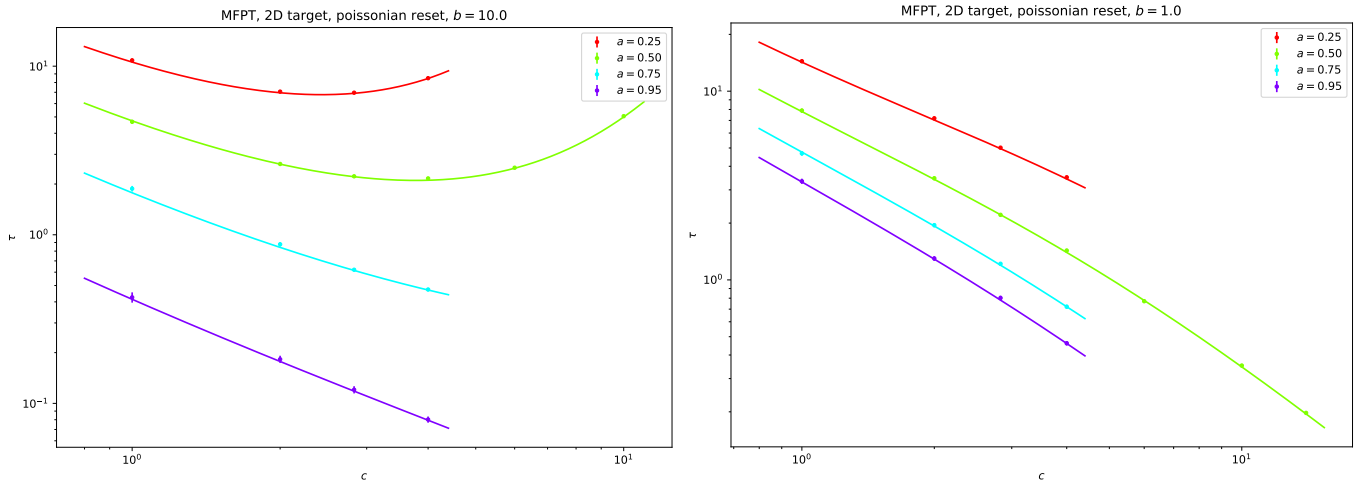


Figure 21. MFPT adimensionné mesuré par simulation de l'équation de Langevin (points), comparé à la théorie $\tau_{\mathsf{f}}(b, c, a)$, représenté en log-log comme fonction de c et pour différentes valeurs du paramètre a et b (lignes). En haut, ensembles de courbes à a constant ($a = 0.5$ et 0.25). En bas, ensembles de courbe à b constant ($b = 10$ et $b = 1$).

Plus a s'approche de 1, plus la cible est grande et donc plus petit est le MFPT; au contraire pour des petits a, la cible est petite et il devient très rare pour la particule de l'atteindre, d'où un grand MFPT.

4.3.3. Réinitialisation périodique

Comme précédemment, il faut injecter (28) dans la relation générale (22) pour obtenir le temps moyen de premier passage dans le protocole de réinitialisation poissonienne à $\sigma = 0 \Leftrightarrow b = \infty$:

$$\tau_{\mathsf{f}}(c, a) = \frac{\dfrac{8a^2}{\pi} \displaystyle\int_0^\infty \mathrm{d}x \, \frac{Y_0(x/a)\, J_0(x) - Y_0(x)\, J_0(x/a)}{J_0(x)^2 + Y_0(x)^2} \left(1 - \mathrm{e}^{-x^2/4a^2c^2}\right)/x^3}{1 - \dfrac{2}{\pi} \displaystyle\int_0^\infty \mathrm{d}x \, \frac{Y_0(x/a)\, J_0(x) - Y_0(x)\, J_0(x/a)}{J_0(x)^2 + Y_0(x)^2} \, \mathrm{e}^{-x^2/4a^2c^2}/x} \tag{31}$$

Plus encore que pour l'intégrale (28), cette expression est particulièrement difficile à intégrer numériquement pour deux raisons :

- L'intégrande du numérateur ne décroît plus exponentiellement, mais seulement en x^{-3}, ce qui le rend l'oscillation un peu plus difficile à dompter

- L'intégrale du dénominateur s'approche exponentiellement près de 1 lorsque c croit : le dénominateur devient très petit, et si l'intégrale n'est pas évaluée avec une grande précision, le résultat devient aberrant, voire négatif ! On s'en sort avec la procédure de régularisation de la section 4.3.1, avec $x_c = c^2$ comme cutoff

Pour vérifier le résultat, on s'appuie sur un développement asymptotique des intégrales à petit et grand c :

$$\tau_{\mathsf{f}}(c, a) \underset{c \to 0}{\simeq} \frac{\ln(1/a)}{c^2 \ln(1/ca)} \quad \text{et} \quad \tau_{\mathsf{f}}(c, a) \underset{c \to \infty}{\simeq} \frac{\sqrt{\pi}\,(1-a)}{c\sqrt{a}} \, \mathrm{e}^{(1-a)^2 c^2} \tag{32}$$

L'erreur sur les valeurs théoriques de $\tau_{\mathsf{f}}(c, a)$ est évaluée à 5% maximum. L'accord entre la simulation avec l'équation de Langevin et la théorie est très bon ($<3\%$ de déviation avec la théorie, cf. fig. 22).

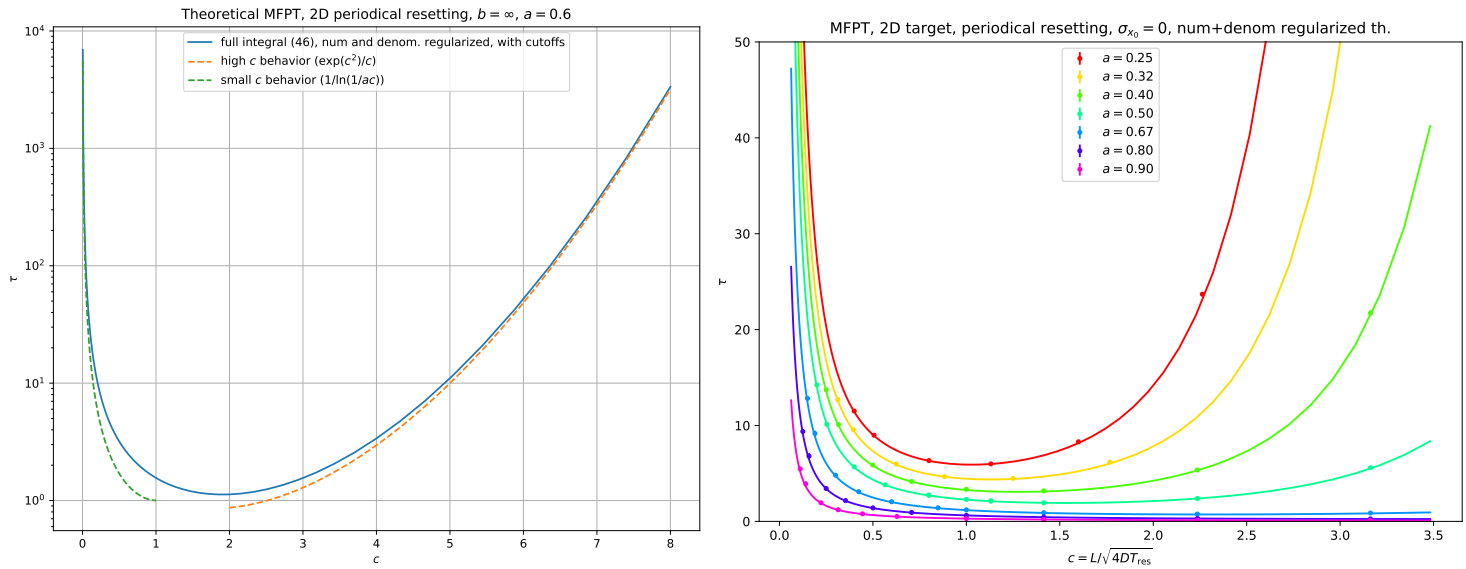


Figure 22. À gauche, MFPT adimensionné théorique $\tau_{\rm f}(b=\infty, c, a=0.6)$ calculé avec la procédure de régularisation, comparé aux développements asymptotiques. À droite, comparaison théorie-simulation, où le MFPT est représenté comme fonction de c et pour différentes valeurs du paramètre a.

Étudions enfin le cas le plus complexe (mais nécessaire car il s'agit du cas réalisable expérimentalement) : pour prendre en compte la distribution gaussienne de la position de réinitialisation, il faut comme précédemment, il faut injecter (28) dans (24) pour obtenir $p^{\rm 2D}_{\rm surv,0,\sigma}(t)$, puis utiliser (22) pour obtenir le temps moyen de premier passage dans le protocole de réinitialisation périodique :

$$\tau_{\rm f}(b,c,a) = \frac{\dfrac{8a^2}{\pi}\displaystyle\int_0^\infty \mathrm{d}x\, \frac{F_1(x,a,b)\,J_0(x) - Y_0(x)\,F_2(x,a,b)}{J_0(x)^2+Y_0(x)^2}\left(1-\mathrm{e}^{-x^2/4a^2c^2}\right)/x^3}{1-\dfrac{2}{\pi}\displaystyle\int_0^\infty \mathrm{d}x\, \frac{F_1(x,a,b)\,J_0(x) - Y_0(x)\,F_2(x,a,b)}{J_0(x)^2+Y_0(x)^2}\,\mathrm{e}^{-x^2/4a^2c^2}/x} \tag{33}$$

où

$$\begin{Bmatrix} F_1 \\ F_2 \end{Bmatrix}(x,a,b) := \mathrm{e}^{-b^2/2}\int_{ab}^\infty \mathrm{d}z\, z\, \mathrm{e}^{-z^2/2}\,\mathrm{I}_0(b\,z)\begin{Bmatrix} \mathrm{Y}_0 \\ \mathrm{J}_0 \end{Bmatrix}\left(\frac{x\,z}{a\,b}\right)$$

Par chance, la procédure de régularisation des intégrales sur x fonctionne encore, mais il s'agit cette fois d'évaluer numériquement une double intégrale $\int_0^\infty \mathrm{d}x \int_{ab}^\infty \mathrm{d}z$, rendant la tâche plus difficile.

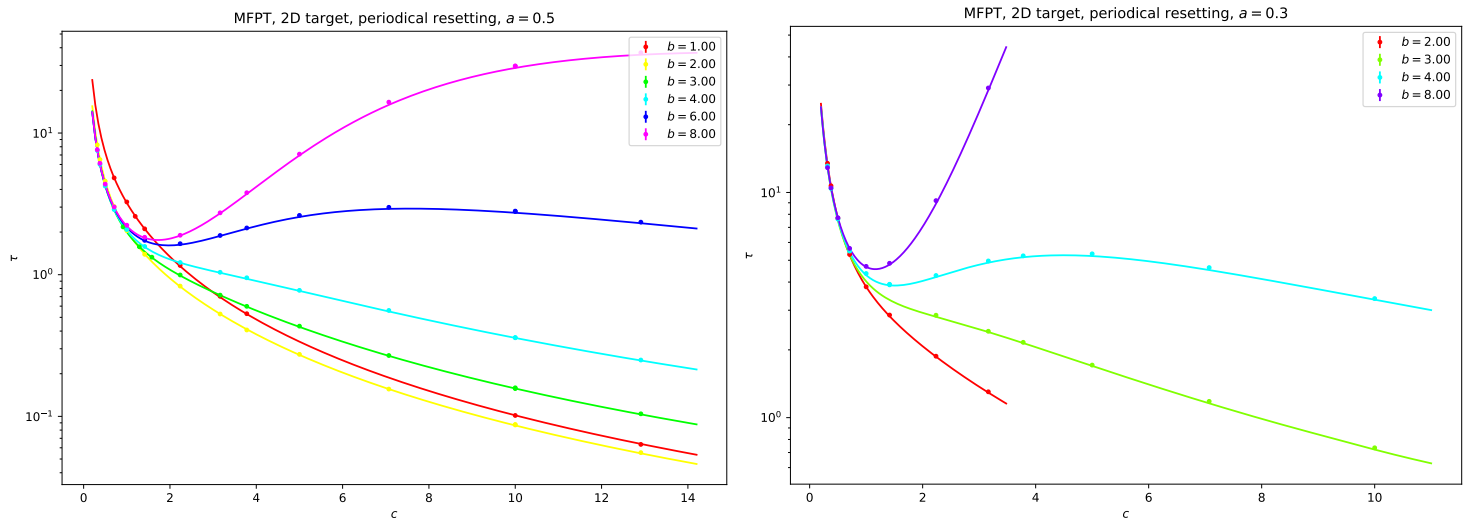


Figure 23. MFPT adimensionné mesuré par simulation de l'équation de Langevin (points), comparé à la théorie $\tau_{\rm f}(b,c,a)$, représenté en log-log comme fonction de c et pour différentes valeurs du paramètre a et b (lignes).

On ne détaillera pas la procédure, qui se trouve à l'adresse https://github.com/xif-fr/BrownianMotion/blob/master/common.py (`fpt_2d_periodical_tau`). L'évaluation d'une seule courbe théorique (100 points échantillonnés en $\log(c)$) prend environ 1 heure, soit plus que la simulation ! Comme précédemment, les courbes sont comparées avec des développement asymptotiques (qui étaient initialement entachés d'une erreur de calcul).

Les commentaires à propos du MFPT avec réinitialisation poissonienne valent encore pour le cas périodique (existence d'un taux de réinitialisation optimal $c_*(b,a)$, global pour $b=\infty$, et local pour $b_{\text{crit}}<b<\infty$).

5. Conclusion

L'étape suivante est l'analyse des données expérimentales en 2D (le cas 1D ayant déjà fait l'objet d'une publication). Ce travail a débuté, et la calibration des données a été effectuée. Le code développé dans la section 3 (détermination de la constante de diffusion D et calibration de la pince optique) est pour cela d'une grande utilité, et de nombreuses imperfections expérimentales qui n'étaient pas présentent en 1D sont à prendre en compte. Le code d'analyse des résultats de simulation est aussi ré-utilisé. L'analyse n'étant pas encore terminée, les résultats ne sont pas mentionnés dans ce rapport, mais il ne devrait pas y avoir de surprises.

Le modèle de particule brownienne soumise à réinitialisation est un modèle de recherche par intermittence qui semble simpliste au premier abord, mais sa réalisation pratique (notamment la prise en compte distribution de la position initiale x_0) fait apparaître des comportements inattendus du MFPT, tout en étant un très bon exemple d'optimisation d'une recherche.

De nombreuses variations pourraient être étudiés, comme la présence d'une force de dérive (fluide en mouvement), ou la recherche multi-agents avec plusieurs particules, potentiellement en interaction.

Bibliographie

[berut] Antoine BÉRUT, Fluctuations and Interactions of Brownian Particles in Multiple Optical Traps. Thèse de doctorat, ENS Lyon, 2015. https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-01192759

[ruben] Juan Rubén GOMEZ-SOLANO. Nonequilibrium fluctuations of a Brownian particle. Thèse de doctorat, ENS Lyon, 2011. https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00648099

[dengler] R. DENGLER. Another derivation of generalized Langevin equations. arXiv:1506.02650v2 (2016).

[aslangul] C. ASLANGUL. Physique statistique de la matière molle (II), cours de DEA de physique des liquides 2003–2004. https://www.lptmc.jussieu.fr/files/Cours_PhystatM2_Aslangul.pdf

[kuraev] KURAEV, RAK, KOLOSOV, *et al.* Fast algorithm for numerically integrating equations of motion for large particles in microwave devices. *Tech. Phys.* **59,** 318–324 (2014). https://doi.org/10.1134/S1063784214030165

[veysey] J. VEYSEY, N. GOLDENFELD. Simple Viscous Flows: from Boundary Layers to the Renormalization Group. *Rev. Mod. Phys.* **79**, 883 (2007). arXiv:physics/0609138v2

[evans2011] M. R. EVANS, S. N. Majumdar. Diffusion with optimal resetting. *J. Phys. A: Math. Theor.* **44** 435001 (2011). https://doi.org/10.1088/1751-8113/44/43/435001

[evans2020] M. R. EVANS, S. N. Majumdar, G. Schehr. Stochastic resetting and applications. *J. Phys. A: Math. Theor.* **53** 193001 (2020). https://doi.org/10.1088/1751-8121/ab7cfe

[publi] B. BESGA, A. BOVON, A. PETROSYAN, S. N. MAJUMDAR, S. CILIBERTO, Optimal mean first-passage time for a Brownian searcher subjected to resetting: experimental and theoretical results. *Phys. Rev. Research* **2**, 032029(R) (2020). arXiv:2004.11311, https://doi.org/10.1103/PhysRevResearch.2.032029

[barzykin] A. V. BARZYKIN, M. TACHIYA, *J. Chem. Phys.* **99**, 9591 (1993).